

UNIVERSITÄT REGENSBURG



# Ladungs- und Spintransportexperimente in Graphen-Nanostrukturen

Dissertation  
zur Erlangung des Doktorgrades der Naturwissenschaften  
(Dr. rer. nat.)  
der Fakultät für Physik  
der Universität Regensburg

vorgelegt von  
Franz-Xaver Schrettenbrunner, geb. in Straubing  
Regensburg, März 2014

Die Arbeit wurde von Prof. Dr. Dieter Weiss angeleitet.  
Das Promotionsgesuch wurde am 20.01.2014 eingereicht.  
Das Promotionskolloquium fand am 02.07.2014 statt.

Prüfungsausschuss:

Vorsitzender:	Prof. Dr. Gunnar Bali
1. Gutachter:	Prof. Dr. Dieter Weiss
2. Gutachter:	Prof. Dr. Klaus Richter
weiterer Prüfer:	PD Dr. Tobias Korn

# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Einleitung und Motivation</b>	<b>1</b>
<b>2. Theoretische Grundlagen zum elektrischen Transport in Graphenstrukturen</b>	<b>5</b>
2.1. Von der Kristallstruktur zur Energiedispersionsrelation in Graphen	5
2.1.1. Die $sp^2$ -Hybridisierung von Kohlenstoff und die daraus resultierende Wabenstruktur . . . . .	5
2.1.2. Die Bandstruktur in Graphen . . . . .	6
2.1.3. Energiedispersionsrelation in der Nähe des Diracpunktes .	8
2.2. Transportphänomene in Graphen ohne Magnetfeld . . . . .	9
2.2.1. Der ambipolare Feldeffekt . . . . .	9
2.2.2. Chirales Klein-Tunneln in Graphen . . . . .	11
2.2.3. Transmission an pn-Übergängen in Graphen . . . . .	12
2.2.4. Übergittereffekte in Graphen . . . . .	17
2.3. Transportphänomene von Graphenstrukturen im Magnetfeld . . .	22
2.3.1. Hall- und Quantenhalfeffekt in Graphen . . . . .	22
2.3.2. Graphen pn-Übergänge im Magnetfeld . . . . .	25
2.3.3. Graphen-Übergitter im Magnetfeld . . . . .	30
2.3.4. Schwache Lokalisierung . . . . .	31
2.3.5. Universelle Leitwertfluktuationen . . . . .	33
<b>3. Prozessierungsverfahren und Messmethoden von Graphenproben mit strukturierten Topgates</b>	<b>35</b>
3.1. Herstellung und Kontaktierung von Graphenhalbars auf $SiO_2$ -Wafern	35
3.1.1. Exfoliation von Graphen . . . . .	35
3.1.2. Elektronenstrahlolithographie und Herstellung von Lackmasken	37
3.1.3. Ätzverfahren und Kontaktierung . . . . .	38
3.2. Besonderheiten in der Topgatefertigung . . . . .	39
3.2.1. Herstellung des Topgatedielektrikums $Al_2O_3$ mittels Atomic Layer Deposition (ALD) . . . . .	39
3.2.2. Fabrikation von strukturierten Topgates . . . . .	45
3.3. Der Messaufbau . . . . .	47
<b>4. Modellierung von strukturierten Topgates mit finiten Elementen</b>	<b>49</b>
4.1. Das FE Modell und die variablen Parameter . . . . .	49
4.2. Ergebnisse der Simulationen . . . . .	50

<b>5. Auswertung der Messungen von Graphenproben mit strukturierten Topgates</b>	<b>55</b>
5.1. Probe A: Modulation mit einem zweidimensionalen Säulenarray . . . . .	55
5.2. Probe B: Diskussion über die Verwendung kurzer Perioden von $a = 80nm$ , dünnen Topgatedielektrika und Graphenbilagen . . . . .	61
5.3. Probe C: Laterale Modulation mit Streifen der Periode $a = 100nm$ und einem $d = 40nm$ dicken $Al_2O_3$ -Topgatedielektrikum . . . . .	64
5.4. Probe D: Laterale Modulation mit Streifen der Periode $a = 100nm$ und einem $d = 25nm$ dicken $Al_2O_3$ -Topgatedielektrikum . . . . .	69
5.5. Probe E: Laterale Modulation mit Streifen der Periode $a = 200nm$ und einem $d = 17nm$ dicken $Al_2O_3$ -Topgatedielektrikum . . . . .	72
5.6. Untersuchungen zu phasenkohärenten Effekten in lateralen Graphenübergittern . . . . .	78
5.7. Zusammenfassung der Ergebnisse und Ausblick auf weitere Forschungsmöglichkeiten an Graphenübergitterstrukturen . . . . .	81
<b>6. Grundlagen des Spintransports</b>	<b>85</b>
6.1. Spintransportphänomene . . . . .	85
6.1.1. Spintransport in Ferromagneten und an Grenzflächen . . . . .	85
6.1.2. Spin-Ventil-Messungen und Spinpräzession in nicht-lokaler Geometrie . . . . .	88
6.2. Der Spin-Hall-Effekt . . . . .	91
6.2.1. Phänomenologische Grundlagen zum Spin-Hall-Effekt . . . . .	91
6.2.2. Der Spin-Hall-Effekt in Graphen . . . . .	93
<b>7. Experimentelle Untersuchungen zum Spin-Hall-Effekt in Graphen</b>	<b>99</b>
7.1. Probenstruktur zur Untersuchung des Spintransports in Graphen . . . . .	99
7.2. Probe F: Direkte Messung des Spin-Hall-Effekts in Graphen . . . . .	104
7.3. Probe G: Verifikation des Spin-Hall-Effekts durch nicht-lokale Messungen . . . . .	111
7.4. Zusammenfassung der Ergebnisse und Ausblick auf die direkte Messung des Spin-Hall-Effekts in Graphen . . . . .	114
<b>A. Prozessdokumentation und detaillierte Probenherstellung</b>	<b>115</b>
A.1. Proben aus Kapitel 3.2.1 zur Untersuchung der Prozessoptimierung der Atomlagenabscheidung auf Graphen . . . . .	115
A.2. Proben mit strukturierten Topgates aus Kapitel 5 . . . . .	116
A.2.1. Proben mit säulenartigen Topgates . . . . .	116
A.2.2. Proben mit linienartigen Topgates . . . . .	117
A.3. Proben zur Untersuchung des Spin-Hall-Effekts aus Kapitel 7 . . . . .	118
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>121</b>
<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>129</b>



# 1. Einleitung und Motivation

Eine Erfahrung, die mich während meiner akademischen Ausbildung besonders geprägt hat, machte ich zu Beginn meiner Diplomarbeit, in der ich die Auswirkung von Topgates auf Graphenstrukturen untersuchen sollte. Ich war sehr begeistert und enthusiastisch, dass ich meine Proben selbst herstellen durfte. Also wurde mir die Exfoliationsmethode von Graphen mit Hilfe von Klebeband beigebracht. Als unerfahrener Neuling, und mit der Pinzette etwas ungeschickt, verteilte ich als Erstes Naturgraphitteile im Reinraum und es stellte sich für mich die Frage, ob diese Methodik denn wirklich so sinnvoll sei.

Kurz danach, als ich es dann doch schaffte, das mit Naturgraphit bestückte Klebeband mit dem Chip zu verbinden, war ich sehr stolz darauf, meine ersten Graphenproben hergestellt zu haben. Die Analyse des präparierten Substrats unter dem Lichtmikroskop brachte ein großes Maß an Ernüchterung, da man neben vereinzelten, makroskopischen Graphitbrocken vor allem den Klebstoff des Scotch Magic Tapes fand.

Zum Glück dauerte es jedoch nicht lange, bis ich das elementare Handwerkszeug verinnerlicht hatte. Schließlich lernte ich immer mehr über die Fabrikationsmethoden meiner Proben, entwickelte neue Designs und prüfte anhand verschiedener Messungen die Funktionalität derselbigen.

Speziell die präzise Herstellung der eigenen Proben ist derjenige Teil, der essentiell für eine erfolgreiche Arbeit an Graphenstrukturen ist. Die wissenschaftliche Methodik letztendlich anhand der gemessenen Daten den Fabrikationsprozess zu optimieren sowie eine theoretische Vorstellung der dahinter stehenden Physik zu verifizieren oder zu widerlegen, stellt meiner Meinung nach den größten Reiz der allgemeinen Grundlagenforschung dar.

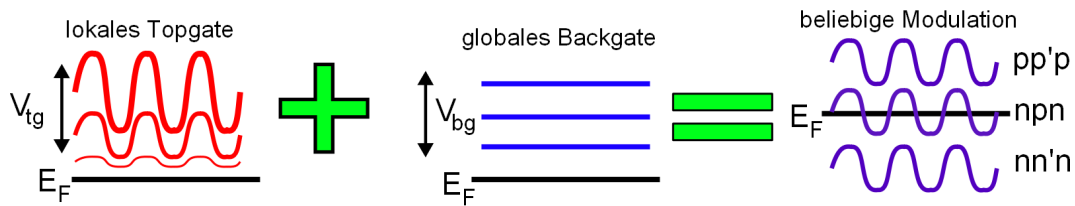
Die Halbleiterphysik sieht sich heute mit dem Problem konfrontiert, alternative Wege zur vorherrschenden CMOS-Technologie zu entwickeln. Eine weitere Miniatürisierung der verwendeten Bauteile dieser Technik wird irgendwann nicht mehr möglich sein, da ab einer gewissen Größe Quanteneffekte vorherrschen. Auch die produzierte Abwärme der Transistoren, die stark mit der verwendeten Taktung zunimmt, wird die Halbleiterindustrie vor große Probleme stellen.

Graphen könnte in der Tat eine Alternative zur konventionellen CMOS-Technologie bieten. Die Beweglichkeiten sind deutlich höher als in den auf Silizium basierenden Bauteilen. Allerdings ist Graphen ein Halbleiter mit verschwindender Bandlücke, so dass das ON/OFF-Stromverhältnis eines Graphentransistors (GFET) nicht groß genug ist. Der Einsatz eines reinen GFET in logischen Schaltungen scheint daher zunächst nicht sinnvoll.

Umso wichtiger ist es, zunächst die grundlegenden elektronischen Eigenschaften von pn-Übergängen in Graphenstrukturen zu verstehen. Der in Graphen auftretende Effekt des Klein-Tunnelns an Grenzflächen stellt ein Novum in der Halbleiterforschung dar und ermöglicht perfekte Transmission durch Graphenheterostrukturen.

Eine weitere Alternative zur CMOS-Technik liegt im Bereich der Spintronik. Neben dem Transport einer elektrischen Ladung kann auch der Spinfreiheitsgrad der Elektronen für die Übertragung von Informationen genutzt werden. Die Herausforderung besteht darin, in Materialien mit großen Spinlebensdauern wie Graphen gezielt spinpolarisierte Ströme zu erzeugen und den Spinfreiheitsgrad aktiv zu beeinflussen.

Diese grundlegenden Überlegungen bilden die Motivation für meine Dissertation über Ladungs- und Spintransportexperimente in Graphen-Nanostrukturen. Der Hauptteil der Arbeit beschäftigt sich mit der ortsabhängigen Ladungsträgermanipulation mit periodischen Topgates. Durch sie können im Graphen gezielt Übergitter erzeugt werden und somit die elektronischen Eigenschaften von Graphen an multiplen pnp-, nn'n- und pp'p-Grenzflächen studiert werden (vgl. Abbildung 1.1).



**Abbildung 1.1:** Vereinfachtes Modell zur globalen und lokalen Modulation der Ladungsträgerdichte in Graphen. Mit Hilfe eines lokal wirkenden Topgates, etwa durch laterale Streifen, kann lokal die Stärke der Ladungsträgerdichte eingestellt werden. Zusätzlich bewirkt ein konventionelles Backgate aus  $\text{SiO}_2$  eine globale Änderung der Ladungsträgerdichte. Durch die Benutzung zweier Gates können nun periodische Modulationen beliebiger Stärke in unipolarer und bipolarer Ladungsträgerkonfiguration erzeugt werden.

In *Kapitel 2* werden zunächst die theoretischen Grundlagen zum elektronischen Transport in Graphen vorgestellt. Dabei liegt der Schwerpunkt in erster Linie in der Beschreibung der Transporteigenschaften von Graphenheterostrukturen ohne und mit äußerem magnetischen Feld.

Anschließend werden in *Kapitel 3* die Prozessierungsverfahren zur Herstellung von Graphenübergittern mit einem strukturierten Topgate erläutert. Dabei spielt die Fertigung des Topgatedielektrikums eine zentrale Rolle, da sich dieser Schritt als maßgeblich für Verunreinigungen in den untersuchten Graphenproben erweist.

Damit man eine quantitative Voraussage treffen kann, wie viele Ladungsträger innerhalb der einzelnen Zonen induziert werden, wurden in *Kapitel 4* Simulationen

---

mit Finite-Element-Modelling (FEM) durchgeführt. Mit Hilfe dieser Ergebnisse werden die Einflüsse von Streufeldern des strukturierten Topgates sichtbar und es können Erkenntnisse über die Scharfkantigkeit der einzelnen Übergänge innerhalb des Graphens gewonnen werden.

Abschließend werden in *Kapitel 5* Messungen und deren Interpretation zu Graphenübergittern vorgestellt. Neben der zweidimensionalen Modulation der Ladungsträger mit Hilfe eines säulenartigen Topgates stehen eindimensionale Modulationen mittels linienartiger Topgates im Fokus der Untersuchungen.

Des Weiteren beschäftigt sich diese Arbeit mit der direkten Messung des Spin-Hall-Effekts in Graphen durch den Einsatz von ferromagnetischen Tunnelkontakten. In *Kapitel 6* wird knapp die Theorie der Spininjektion und des Spin-Hall-Effekts erläutert.

In *Kapitel 7* werden schließlich die verschiedenen Messungen zum Spintransport in Graphen dargelegt. Die Proben wurden dabei mit Wasserstoff angereichert, um die Spin-Bahn-Wechselwirkung zu erhöhen und damit den Spin-Hall-Effekt direkt sichtbar zu machen. Weitere Experimente in nichtlokalen Geometrien untermauern die Tatsache, dass es sich bei den gemessenen Kurven um den Spin-Hall-Effekt handelt.



## 2. Theoretische Grundlagen zum elektrischen Transport in Graphenstrukturen

In diesem Kapitel soll auf die grundlegenden Transporteigenschaften von Graphen in Hinblick auf Übergitterstrukturen und pn-Übergängen eingegangen werden. Zunächst werden die Wabenstruktur des Graphens und die daraus resultierende Dispersionsrelation näher beleuchtet. Ein weiteres Augenmerk gilt dem Transportverhalten ohne ein äußeres magnetisches Feld, bei dem graphenspezifische Effekte wie chirales Klein-Tunneln und Phänomene an pn-Übergängen eine wesentliche Rolle spielen. Zusätzlich werden Transporteffekte mit äußerem magnetischen Feld, wie der Quantenhalfeffekt, erläutert sowie Übergitter und pn-Übergänge von Graphen im Magnetfeld näher betrachtet. Abschließend wird auf phasenkohärente Effekte, wie schwache Lokalisierung und universelle Leitwertfluktuationen, eingegangen.

### 2.1. Von der Kristallstruktur zur Energiedispersionsrelation in Graphen

#### 2.1.1. Die $sp^2$ -Hybridisierung von Kohlenstoff und die daraus resultierende Wabenstruktur

Kohlenstoff besitzt in der Natur einige Modifikationen, von denen wohl Diamant und Graphit zu den bekanntesten zählen. Der Unterschied in den beiden Allotropen beruht auf einer unterschiedlichen Vermischung von Energieorbitalen in den jeweiligen Strukturen. Während die Valenzelektronen in Diamant  $sp^3$ -hybridisiert sind, sind die einzelnen Graphenlagen im Graphit  $sp^2$ -hybridisiert.

Als sechstes Element des Periodensystems der Elemente besitzt ein einzelnes, neutrales Kohlenstoffatom sechs Elektronen, die sich in der Konfiguration  $1s^2 2s^2 2p^2$  befinden. Die beiden inneren Kernelektronen im Orbital  $1s^2$  tragen nicht zur chemischen Bindung mit anderen Stoffen bei und spielen beim elektrischen Transport eine weitestgehend untergeordnete Rolle. Für chemische Bindungen zwischen verschiedenen Kohlenstoffatomen sind maßgeblich vier Valenzelektronen verantwort-

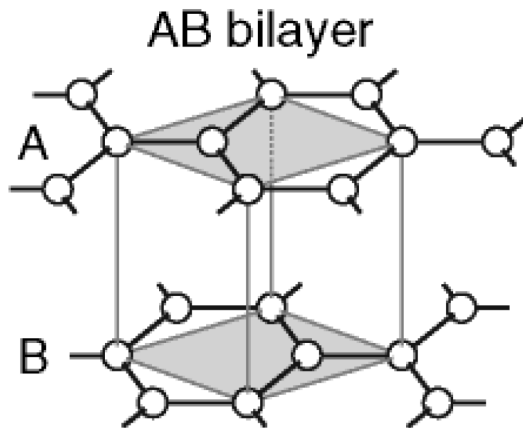
lich, welche sich in der kristallinen Phase in den äußeren Orbitalen  $2s$  und  $2p_{x,y,z}$  befinden [1].

Der Unterschied zwischen den Energieniveaus der  $2s$ - und der  $2p$ -Zustände ist im Vergleich zu den typischen Bindungsenergien kovalenter Bindungen sehr gering. Bei Wechselwirkung mit anderen Atomen erfährt das Kohlenstoffatom eine Hybridisierung, bei der die Elektronenhüllen verformt werden und sich das  $2s$  und mindestens ein  $2p$ -Orbital vermischen. Es kommt zu einer Maximierung der Bindungsenergie und die Gesamtenergie des Moleküls wird minimiert [2] [3].

Grundlage des Graphens ist die  $sp^2$ -Hybridisierung des Kohlenstoffs, bei der sich das  $2s$ - mit dem  $2p_x$ - und dem  $2p_y$ -Orbital zu drei Hybridorbitalen mischt. Die dazugehörigen, bereits normierten und orthogonalisierten Wellenfunktionen lauten:

$$\begin{aligned}\Psi_1(\phi) &= \frac{1}{2\sqrt{\pi}} \left( \frac{1}{\sqrt{3}} + \sqrt{2} \cos(\phi) \right), \\ \Psi_2(\phi) &= \frac{1}{2\sqrt{\pi}} \left( \frac{1}{\sqrt{3}} - \frac{1}{\sqrt{2}} \cos(\phi) + \sqrt{\frac{3}{2}} \sin(\phi) \right), \\ \Psi_3(\phi) &= \frac{1}{2\sqrt{\pi}} \left( \frac{1}{\sqrt{3}} - \frac{1}{\sqrt{2}} \cos(\phi) - \sqrt{\frac{3}{2}} \sin(\phi) \right).\end{aligned}\tag{2.1}$$

Der Winkelanteil des Azimuthalwinkels der Gleichungen 2.1 besitzt sein Maximum bei jeweils  $0^\circ$ ,  $120^\circ$  und  $240^\circ$ . Dies führt beim  $sp^2$ -hybridisierten Kohlenstoff zu drei gerichteten Bindungen in der  $x$ - $y$ -Ebene, wobei das vierte  $\pi$ -Elektron im  $p_z$ -Orbital verbleibt und nicht an den Bindungen teilnimmt (vgl. Abb. 2.1). Vielmehr ist es hauptverantwortlich für die elektronischen Eigenschaften in Graphen [4].



**Abbildung 2.1:** Eine Doppellage Graphen mit AB-Stapelfolge. Jedes Kohlenstoffatom besitzt drei  $sp^2$ -Hybridorbitale, welche mit jeweils drei weiteren Atomen planare Bindungen eingehen. Das Elektron im  $p_z$ -Orbital trägt maßgeblich zum elektrischen Transport bei. Die grau schraffierten Flächen skizzieren die Einheitszelle der Doppellage. Grafik aus [5].

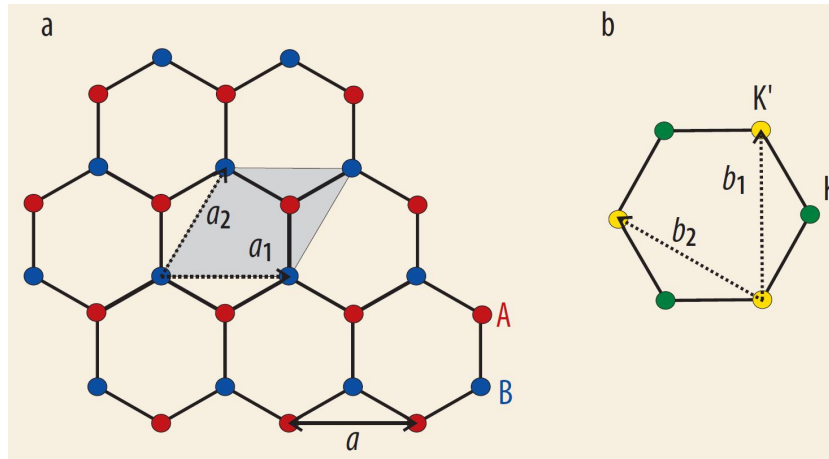
### 2.1.2. Die Bandstruktur in Graphen

Um die Bandstruktur in Graphen bestimmen zu können, bedarf es einer genaueren Betrachtung der Kristallstruktur einer Graphenmonolage. Aus der  $sp^2$ -Hybri-

disierung des Kohlenstoffs in Graphen ergibt sich formal ein zweidimensionales Gitter, welches in regelmäßigen Sechsecken angeordnet ist. Dem hexagonalen Gitter liegt eine zweiatomige Basis aus zwei Kohlenstoffatomen zu Grunde. Die Ortsvektoren

$$\begin{aligned}\vec{a}_1 &= (a, 0) , \\ \vec{a}_2 &= \left( \frac{a}{2}, \frac{\sqrt{3}a}{2} \right)\end{aligned}\tag{2.2}$$

spannen das Gitter auf, wobei  $a = 2,46\text{\AA}$  die Gitterkonstante beschreibt. Der Abstand benachbarter Kohlenstoffatome ergibt sich somit zu  $a_{C-C} = 1,42\text{\AA}$ .



**Abbildung 2.2:** Gitter im Ortsraum und Brillouinzone des reziproken Raums.  
**a)** Eine zweiatomige Basis (hier in rot und blau) ist Grundlage des Graphenkristalls.  
**b)** Die Brillouinzone des reziproken Gitters ist ebenfalls von hexagonaler Struktur, deren inäquivalente Eckpunkte  $K$  und  $K'$  Zentren hoher Symmetrie der jeweiligen Untergitter (hier in gelb und grün) darstellen.  
Graphik aus [4].

Das reziproke Gitter ist ebenfalls hexagonal und berechnet sich gemäß der Bedingung  $\vec{a}_i \vec{b}_j = 2\pi \delta_{ij}$  mit  $b = \frac{4\pi}{\sqrt{3}a}$  zu

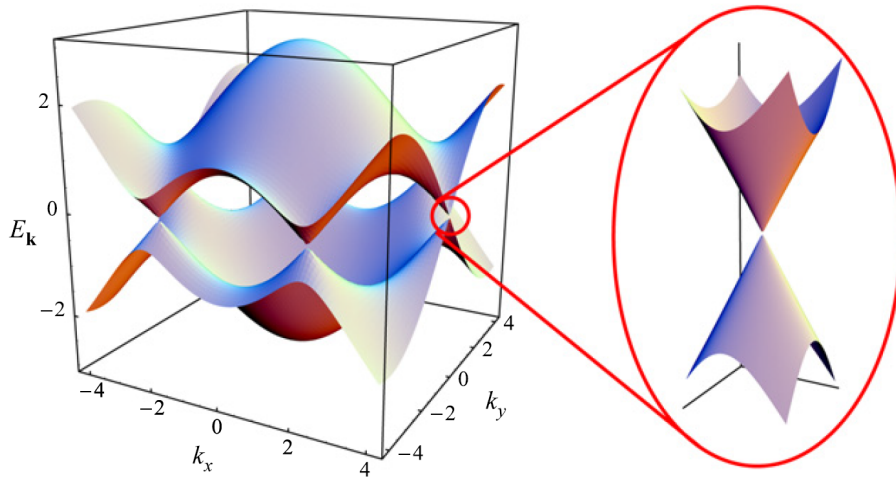
$$\begin{aligned}\vec{b}_1 &= \left( -\frac{\sqrt{3}b}{2}, \frac{b}{2} \right) , \\ \vec{b}_2 &= (0, b) .\end{aligned}\tag{2.3}$$

Abbildung 2.2 zeigt das Gitter im Ortsraum und die Brillouinzone des reziproken Raums. Die Gittervektoren werden für die Berechnung der Energiedispersionsrelation des  $\pi$ -Elektrons herangezogen. Die Herleitung für Graphit wurde bereits in den vierziger Jahren des 20. Jahrhunderts durchgeführt [6] und findet sich in einigen Lehrbüchern (vgl. dazu [1]) wieder. Grundlage der Berechnung bildet das Tight-Binding-Modell und die Näherung, nur die jeweils drei nächst benachbarten Kohlenstoffatome (nearest neighbour approximation) einzubeziehen. Das zentrale Ergebnis dieser Berechnung liefert die Dispersionsrelation von Graphen:

$$\omega(\vec{k}) = \sqrt{1 + 4 \cos \frac{\sqrt{3}k_x a}{2} \cos \frac{k_y a}{2} + 4 \cos^2 \frac{k_y a}{2}}. \quad (2.4)$$

### 2.1.3. Energiedispersionsrelation in der Nähe des Diracpunktes

Die Dispersionsrelation in Graphen (vgl. Gleichung 2.4) bringt einige Besonderheiten mit sich. Abbildung 2.3 zeigt eine graphische Auftragung des Valenz- und Leitungsbandes in Graphen innerhalb der Brillouinzone.



**Abbildung 2.3:** *Bandstruktur in Graphen. Das Valenzband und das Leitungsband berühren sich an den sechs Eckpunkten der Brillouinzone. Betrachtet man diese sogenannten K- und K'-Punkte näher, so erkennt man ein kegelförmiges Spektrum mit linearer Dispersion. Graphik aus [7].*

Wie aus Abbildung 2.3 ersichtlich, berühren sich Valenz- und Leitungsband an den K- und K'-Punkten, den Ecken der Brillouinzone. Im intrinsischen Fall  $E_k = 0$  ist das bindende  $\pi$ -Band mit den zwei Valenzelektronen gefüllt und das antibindende  $\pi^*$ -Band verbleibt leer.

Die Besonderheit des Graphens zeigt sich bei genauerer Betrachtung der K- und K'-Punkte. Hier ist das Energiespektrum, unabhängig von weiteren Näherungen,



kegelförmig und kann als Ergebnis der Symmetrie einer einzelnen, isolierten Graphenlage unter Vernachlässigung der Spin-Bahn-Wechselwirkung verstanden werden [8].

Mit Hilfe einer Taylorentwicklung um den K-Punkt für kleine  $|k|$ , bei der die Reihe nach der ersten Ordnung abgebrochen wird, erhält man für  $\omega(\vec{K}) = 0$  formell die lineare Abhängigkeit an den K- und K'-Punkten

$$E_{\pm} \approx \pm v_F |\vec{p}|, \quad (2.5)$$

wobei  $v_F$  die Fermigeschwindigkeit in Graphen bezeichnet. Dies gilt für Energien  $|E| < 1\text{eV}$ . Die Fermigeschwindigkeit beträgt ungefähr ein Dreihundertstel der Lichtgeschwindigkeit:  $\frac{c}{v_F} \approx 300$  [9].

Gleichung 2.5 stellt insofern eine Besonderheit dar, als die Elektronenmasse nicht in die Berechnung der Fermigeschwindigkeit mit einfließt und sich die Ladungsträger formal wie Photonen verhalten, also wie masselose, relativistische Teilchen mit definierter Geschwindigkeit [10]. Der Hamiltonoperator zur Beschreibung des linearisierten Doppelkegels der Dispersionsrelation für ein Valley lautet

$$H_0 = \hbar v_F \begin{pmatrix} 0 & k_x - ik_y \\ k_x + ik_y & 0 \end{pmatrix} = \hbar v_F \vec{\sigma} \cdot \vec{k}, \quad (2.6)$$

wobei  $\vec{k}$  den Teilchenimpuls,  $v_F$  die Fermigeschwindigkeit und  $\vec{\sigma}$  die zweidimensionale Paulimatrix beschreibt [9]. In Hinblick auf die Quantenelektrodynamik gleicht der Hamiltonoperator aus Gleichung 2.6 der relativistischen Dirac-Weyl-Gleichung und gibt dem Graphen aufgrund der Notwendigkeit, den Zustand des Teilchens mit einem zweikomponentigen Spinor zu beschreiben, einen zusätzlichen Freiheitsgrad, der als Pseudospin bezeichnet wird. Dieser zusätzliche Freiheitsgrad ist eine direkte Konsequenz aus den beiden Untergittern der Graphenkristallstruktur und erlaubt die Einführung der Chiralität, der Projektion des Pseudospins auf die Bewegung des Ladungsträgers [11] [12].

## 2.2. Transportphänomene in Graphen ohne Magnetfeld

### 2.2.1. Der ambipolare Feldeffekt

Feldeffekttransistoren bilden die wichtigsten Bauteile der modernen Elektronik. Durch das Anlegen einer Spannung an einem Gate können gezielt die elektrischen Eigenschaften eines Halbleiters modifiziert und kontrolliert werden [13]. Die Fabrikation und Charakterisierung von auf Graphen basierenden Feldeffekttransistoren ist im Gegensatz zum klassischen Si-MOSFET eine Besonderheit, da es sich bei

Graphen um einen Halbleiter mit verschwindender Bandlücke handelt. Ausgehend vom Drude-Modell ist die Leitfähigkeit

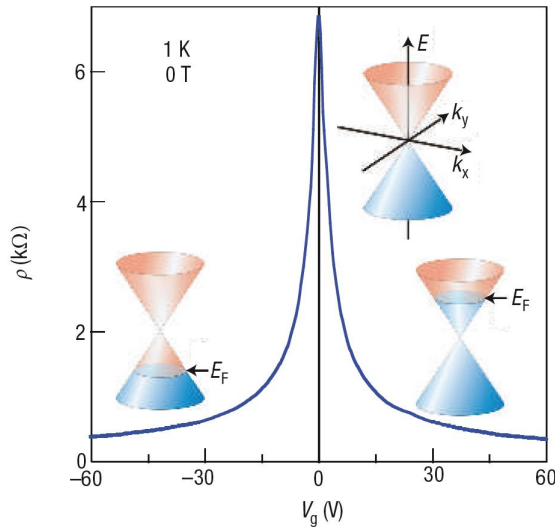
$$\sigma = ne\mu \quad (2.7)$$

das Produkt aus der Ladungsträgerkonzentration  $n$  im Material, der Elementarladung  $e$  und der Beweglichkeit  $\mu$  der Ladungsträger. Geht man von einer Graphenlage aus, die sich auf einem Isolator der Dicke  $d$  mit der Dielektrizitätskonstante  $\epsilon_r$  befindet, so kann man beim Anlegen einer Gatespannung  $V_g$  an der Fläche des Isolators das System als Plattenkondensator mit Graphen als zweiter Platte betrachten. Durch die Gatespannung lassen sich folglich

$$n = \frac{\epsilon_0 \epsilon_r V_g}{de} \quad (2.8)$$

Ladungsträger in Graphen injizieren ( $\epsilon_0$  bezeichnet hier die elektrische Feldkonstante) und die Leitfähigkeit aus Gleichung 2.7 kann in Abhängigkeit der Gatespannung geschrieben werden:

$$\sigma = \frac{\epsilon_0 \epsilon_r}{d} \mu V_g . \quad (2.9)$$



**Abbildung 2.4:** Gateabhängiger Widerstand einer Graphenprobe bei ca.  $T = 1\text{K}$ . Die Ambipolarität des Materials zeigt sich in der typischen Kurve mit einem Widerstandsmaximum bei  $E_F = 0$ . Bei negativen Gatespannungen bestimmen Löcher den Transport, bei positiven Gatespannungen die Elektronen. Grafik aus [9].

Abbildung 2.4 zeigt einen typischen Gatesweep einer nicht dotierten Graphenmonolage bei  $T = 1\text{K}$  und  $B = 0\text{T}$ . Ohne einer angelegten Gatespannung  $V_g = 0\text{V}$  befindet sich die Fermienergie am Schnittpunkt des Doppelkegels und der Widerstand wird maximal, respektive die Leitfähigkeit minimal. Fradkin sagte mit Hilfe einer effektiven Feldtheorie für Diracfermionen voraus, dass intrinsisches Graphen eine ballistische Leitfähigkeit von  $\sigma_D = \frac{4e^2}{\pi h}$  besitzt [14], obgleich das Problem der minimalen Leitfähigkeit experimentell noch kontrovers diskutiert wird. Unter anderem konnte gezeigt werden, dass es Fluktuationen in der Ladungsträgerdichte

gibt. Diese Electron-Hole-Puddles treten am Diracpunkt mit Dichten von etwa  $1 \cdot 10^{11} \text{cm}^{-2}$  auf (vgl. dazu [15]).

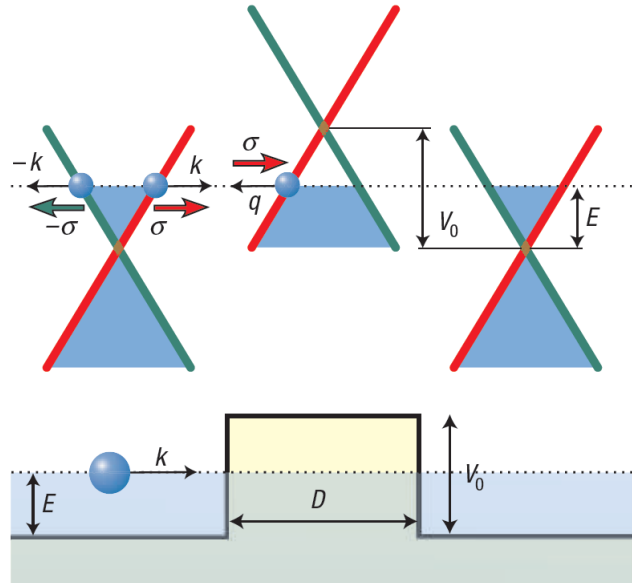
Durch das Anlegen negativer Spannungen liegt die Fermienergie im Valenzband und es findet Löchertransport statt. Ebenso tragen bei positiven Spannungen Elektronen zum elektrischen Transport bei. Aus den Gatekurven der Abbildung 2.4 und unter Zuhilfenahme von Gleichung 2.9 lässt sich die Beweglichkeit  $\mu$  als Bestandteil der Steigung im  $\sigma$ - $V_g$ -Diagramm bestimmen.

### 2.2.2. Chirales Klein-Tunneln in Graphen

Die lineare Dispersionsrelation und die theoretische Beschreibung von Graphen mittels der Dirac-Weyl-Gleichung (vgl. Kap. 2.1.3) legen im elektrischen Transport Phänomene nahe, die in Analogie zur Quantenelektrodynamik stehen. Dazu zählt in erster Linie das chirale Klein-Tunneln in Graphen.

Trifft ein Teilchen mit Energie  $E$  auf eine Potentialbarriere mit Höhe  $V_0 > E$ , so sagt die Quantenmechanik eine gewisse Tunnelwahrscheinlichkeit voraus, die exponentiell von der Länge der Tunnelbarriere abhängt. Im Falle relativistischer Teilchen gilt dieses Verhalten auch für Energien  $|E - V_0| < mc^2$ , wobei  $m$  die Ruhemasse des Teilchens und  $c$  die Vakuumlichtgeschwindigkeit darstellt. Sobald die Potentialbarriere  $V_0$  jedoch größer als die Ruheenergie  $mc^2$  des Teilchens wird, liefert das Lösen der Dirac-Gleichung eine durchgehende, oszillierende, ebene Welle hoher Transmissionswahrscheinlichkeit durch die Barriere [16] [17].

**Abbildung 2.5:** Modell des chiralen Tunnelns in Graphen. Das untere Bild skizziert die Potentialbarriere mit dem einfallenden Elektron. Im oberen Bild stellen die blauen Flächen die besetzten Zustände innerhalb und außerhalb der Barriere dar. Die roten und grünen Linien des Doppelkegels beziehen sich auf den Pseudospin, unter dessen Erhaltung das chirale Tunneln in Graphen möglich wird. Grafik aus [18].



Dieser Effekt ist in der Literatur als Klein-Paradoxon bekannt. Dieser rein relativistische Effekt kann dadurch verstanden werden, dass ein genügend starkes Potential, welches abstoßend auf Elektronen ist, anziehend für deren Antiteilchen, die

Positronen, innerhalb der Barriere ist. Grundlage hierfür ist die fundamentale Eigenschaft der Diracgleichung, dass die Zustände negativer und positiver Energien (Teilchen) in verschiedenen Komponenten ein und derselben Spinorwellenfunktion miteinander verknüpft sind [18], obgleich der Effekt eine Potentialbarriere von  $mc^2$  respektive elektrische Feldstärken von über  $10^{16} \text{Vcm}^{-1}$  erfordert und unter normalen Laborbedingungen nicht zugänglich ist.

Analog dazu lässt sich das chirale Klein-Tunneln in Graphen formulieren, in dem wie in der Quantenelektrodynamik die Dispersionsrelation linear verläuft und die Löcher als Antiteilchen der Elektronen verstanden werden können. Des Weiteren werden im Gegensatz zur Schrödingergleichung Löcher und Elektronen in Graphen als Spinoren einer Wellenfunktion beschrieben, welche aus den beiden Untergittern resultieren. Diese zweikomponentige Schreibweise bzw. dieser Spin-Index kann als Pseudospin  $\sigma$  assoziiert werden.

Abbildung 2.5 skizziert das chirale Klein-Tunneln in Graphen. Trifft ein Elektron auf eine stufenförmige Potentialbarriere mit Dicke  $D$ , führt das zur Invertierung des Ladungsträgers innerhalb der Barriere. Diese Transmission ist durch die Tatsache ermöglicht, dass der Pseudospin, welcher parallel zu den Elektronen außerhalb und antiparallel zu den Löchern innerhalb der Barriere ist, erhalten bleibt. Nach dem Durchgang durch die Barriere wird das Loch wieder zu einem Elektron invertiert. Die einzelnen physikalischen Phänomene, die sich daraus ergeben, werden in Kapitel 2.2.3 näher beleuchtet.

### 2.2.3. Transmission an pn-Übergängen in Graphen

Das in Kapitel 2.2.2 beschriebene Klein-Tunneln in Graphen führt zu einer Reihe verschiedenster Phänomene an Graphen pn-Übergängen, die man in konventionellen Halbleitern nicht beobachten würde. Insbesondere ergibt die Berechnung der winkelabhängigen Transmission einige Besonderheiten, die im Folgenden näher erörtert werden (vgl. dazu [18] und [19]). Man betrachtet dazu eine rechteckige Potentialbarriere mit scharfen Kanten und der Länge  $D$  mit

$$V(x) = \begin{cases} V_0 & \text{für } 0 < x < D \\ 0 & \text{sonst} \end{cases}, \quad (2.10)$$

bei der unterhalb des Potentials Löcher erzeugt werden (vgl. Abbildung 2.5). Die Wahrscheinlichkeit von Transmission und Reflexion eines unter einem Winkel  $\phi$  von links einfallenden Elektrons kann berechnet werden, indem man unter Einhaltung von Stetigkeit und Differenzierbarkeit die Diracspinoren  $\Psi_1$  und  $\Psi_2$  für den Hamiltonian  $H = H_0 + V(x)$  bestimmt, wobei mit  $H_0$  der Diracoperator des intrinsischen Graphens aus Gleichung 2.6 gemeint ist. Das zentrale Ergebnis der Transmissionswahrscheinlichkeit  $T$  lautet

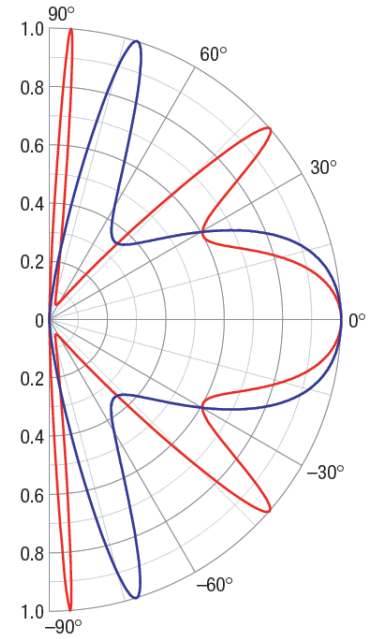
$$T = \frac{\cos^2 \phi}{1 - \cos^2(q_x D) \sin^2 \phi} \quad (2.11)$$

mit dem Wellenvektor  $q_x$  innerhalb des Barriere

$$q_x = \sqrt{\frac{(E - V_0)^2}{\hbar^2 v_F^2} - k_y^2}. \quad (2.12)$$

Abbildung 2.6 zeigt die Winkelabhängigkeit der Transmission in Graphen unter Berücksichtigung verschiedener Löcherkonzentrationen (rote und blaue Linien) bei fixer Elektronenkonzentration außerhalb der Barriere. Die Transmission wird bei den Resonanzbedingungen  $q_x D = \pi N$  mit  $N \in \mathbb{N}$  maximal und es findet keine Rückstreuung an der Barriere statt. Weiterhin ist die Transmission für ein senkrecht einfallendes Teilchen ( $q_x = 0$ ) stets 1. Dieses Ergebnis spiegelt die Erhaltung des Pseudospins masseloser Diracfermionen wider.

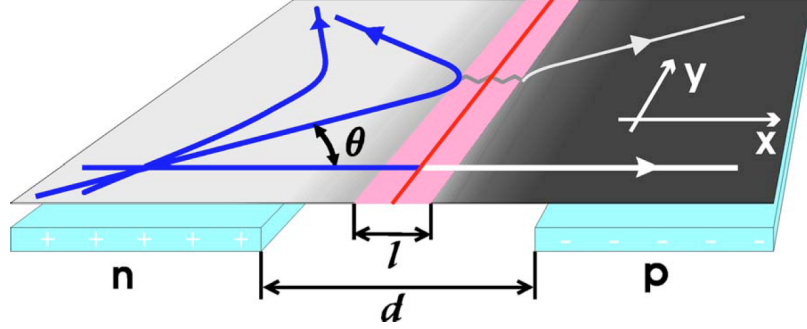
**Abbildung 2.6:** Klein-Tunnel-Wahrscheinlichkeit in Abhängigkeit des Auftreffwinkels. Grundlage ist eine 100nm breite Barriere mit Elektronendichte  $n = 0,5 \cdot 10^{12} \text{cm}^{-2}$  außerhalb der Barriere und Lochdichten  $p = 1 \cdot 10^{12} \text{cm}^{-2}$  und  $p = 3 \cdot 10^{12} \text{cm}^{-2}$  innerhalb der Barriere. Unabhängig der Potentialstufe ist die Transmissionswahrscheinlichkeit bei senkrechtem Einfall 100%. Grafik aus [18].



Das Klein-Tunneln an pn-Grenzflächen liefert weitere Anwendungsmöglichkeiten von Graphenheterostrukturen. Betrachtet man den Wellenvektor einer einfallenden Welle im Leitungsband des n-dotierten Bereichs mit  $\vec{k} = (k_L \cos \Theta_L, k_L \sin \Theta_L)$ , so ergibt sich dieser für die transmittierte Welle in das Valenzband des p-Bereichs zu  $\vec{k} = (-k_V \cos \Theta_V, -k_V \sin \Theta_V)$ . In Analogie zur geometrischen Optik lässt sich für die transmittierten Ladungsträger ein Brechungsgesetz formulieren. Der zur Grenzfläche parallele Teil des Impulses  $k_y$  muss erhalten bleiben und es folgt ein vom Betrag her negativer Brechungsindex

$$n = \frac{\sin \Theta_L}{\sin \Theta_V} = \frac{k_V}{k_L} . \quad (2.13)$$

Der pn-Übergang stellt eine Veselagolinse dar. Ein divergenter Elektronenstrahl wird im p-Bereich wieder exakt fokussiert, falls die Ladungsträgerdichten gleich sind. Für den asymmetrischen Fall  $n \neq p$  erfährt die Veselagolinse eine Aberration (vgl. dazu [20] und [21]).



**Abbildung 2.7:** *np-Übergang in Graphen. Die Transmission der Ladungsträger ist abhängig vom Winkel. Der Übergang selbst ist insbesondere in realen Proben nicht scharfkantig sondern hat eine endliche Ausdehnung  $l$ . Grafik aus [21].*

Die Annahme einer scharfkantigen pn-Grenze wird dem Experiment nicht gerecht. Vielmehr muss man von geglätteten Potentialsprüngen der Länge  $d$  ausgehen (siehe Abbildung 2.7). Für glatte pn-Übergänge  $k_F d \gg 1$  hängt die Transmissionswahrscheinlichkeit von der zentralen Region  $l$  ab, in der das Potential linear betrachtet werden kann:  $u(x) \approx Fx = \frac{v k_F}{d}$ . Dabei spiegelt  $F$  das eingebaute, elektrische Feld des pn-Übergangs wider. Für Winkel, welche nicht nahe an  $\pi/2$  liegen, kann gezeigt werden, dass die Transmissionswahrscheinlichkeit bei

$$T(\theta) = e^{-\pi \hbar v_F k_y^2 / F} \quad (2.14)$$

und die damit verbundene Leitfähigkeit des pn-Übergangs durch Integration der Transmissionswahrscheinlichkeit über die Winkel  $\Theta$  bei

$$\sigma_{pn} \approx \frac{2e^2}{\pi h} d \sqrt{\frac{F}{\hbar v_F}} \quad (2.15)$$

liegen. Analog zu scharfkantigen Potentialstufen ist die Transmission bei senkrechtem Einfall 100%, für Abweichungen dazu nimmt sie jedoch exponentiell ab [21] [22].

Für die exakte, quantitative Bestimmung der Transmissionswahrscheinlichkeit und der damit einhergehenden Leitfähigkeit am pn-Übergang spielt das elektrische

Feld  $F$  eine zentrale Rolle. Ausschlaggebend hierfür ist eine starke Coulomb-Wechselwirkung, der die Elektronen und Löcher innerhalb der pn-Grenzfläche unterliegen. Ein möglicher Ansatz zur Berechnung bietet die Annahme eines kleinen, dimensionslosen Parameters  $\alpha$ , der die Stärke der Coulomb-Wechselwirkung beschreibt:

$$\alpha = \frac{e^2}{\kappa_0 \hbar v_F} . \quad (2.16)$$

Da  $\kappa_0$  die effektive Dielektrizitätskonstante des Substrats ist, bieten hohe  $\kappa_0$  wie bei  $\text{HfO}_2$  geringe Werte für  $\alpha$ . Das Endresultat liefert für das eingebaute, elektrische Feld

$$e|F_{pn}| = 2.5 \hbar v_F \alpha^{1/3} (\rho'_{cl})^{2/3} \quad (2.17)$$

mit  $\rho'_{cl} > 0$  als Gradient der Ladungsträgerdichte des pn-Übergangs. Für Graphen auf herkömmlichen  $\text{SiO}_2$ -Substraten kann es aufgrund des größer werdenden Parameters  $\alpha$  zu Korrekturen in Gleichung 2.17 von schätzungsweise 25% kommen [23].

Die Ausweitung der Theorie auf pnp/npn-Heterostrukturen berücksichtigt im Folgenden auch den zweiten Klein-Tunnelprozess respektive die Reflexion an der gegenüberliegenden Seite der Potentialwand. Die Transmission in solch einem System kann durch das Fabry-Pérot-Modell beschrieben werden. Die Transmission eines Ladungsträgers, der innerhalb der Barriere mehrfach reflektiert wird, hängt periodisch von einer Phasenverschiebung

$$\Delta\theta = 2\theta_{WKB} + \Delta\theta_1 + \Delta\theta_2 \quad (2.18)$$

ab, wobei  $\theta_{WKB} = \frac{1}{\hbar} \int_1^2 p_x(x') dx'$  die Wentzel-Kramers-Brillouin-Phase benachbarter Trajektorien darstellt und  $\Delta\theta_{1,2}$  die Phasensprünge der reflektierten Wellen an der linken und rechten Grenzfläche der pnp-Heterostruktur beschreiben. Bei senkrechtem Einfall erhält man einen Phasensprung von  $\pi$  [24].

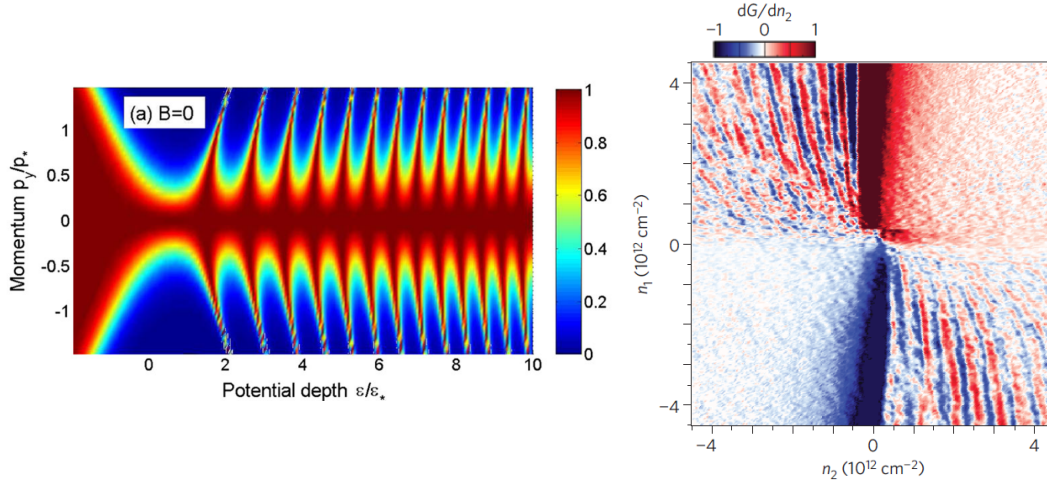
Die Berechnung des periodischen Anteils der Transmission im Fabry-Pérot-Modell erfolgt unter Berücksichtigung der Phasenverschiebung  $\Delta\theta$  mit Hilfe des Landauer-Büttiker-Formalismus

$$G_{osc} = \frac{8e^2}{h} \sum_{k_y} |T_+|^2 |T_-|^2 |R_+| |R_-| \cos(\theta_{WKB} + \Delta\theta_1 + \Delta\theta_2) e^{-2L/l_{LGR}} , \quad (2.19)$$

wobei  $T_{\pm}$  und  $R_{\pm}$  Transmissions- und Reflexionsamplituden innerhalb der Barriere,  $L$  die Breite der Barriere und  $l_{LGR}$  die mittlere freie Weglänge innerhalb der

Barriere beschreibt. Letzterer Parameter ist entscheidend für das oszillatorische Verhalten der Leitfähigkeit [25].

Die theoretisch vorhergesagten Oszillationen der Leitfähigkeit eines pnp-Übergangs wurden auch experimentell bestätigt. Im linken Graphen der Abbildung 2.8 ist die berechnete Transmission einer Graphen-Heterostruktur ohne äußeres Magnetfeld in Abhängigkeit des relativen Elektronenimpuls  $p_y/p_* = p_y v_F / \epsilon_*$  und der Höhe der relativen Potentialhöhe  $\epsilon/\epsilon_*$  zu sehen, wobei  $\epsilon_* = (a v_F^2 \hbar)^{1/3}$  die Energie eines einfallenden Elektrons auf einen als parabelförmig angenommenen pnp-Übergang mit Potential  $U = ax^2 - \epsilon$  ( $\epsilon > 0$ ) bezeichnet (vgl. dazu [24]). Zum Einen erkennt man die perfekte Transmission des Elektrons unter senkrechtem Einfall ( $p_y = 0$ ) bedingt durch resonantes Klein-Tunneln. Zum Anderen bringt eine Erhöhung der Potentialbarriere für nicht mehr senkrecht einfallende Ladungsträger ein oszillatorisches Verhalten der Transmission mit sich.



**Abbildung 2.8:** *Transmission und Leitfähigkeit einer Graphenheterostruktur. Links ist die Transmission eines parabelförmigen Potentialverlaufs für verschiedene Potentialhöhen und Elektronenimpulse senkrecht zur Barriere dargestellt. Rechts im Experiment sieht man die erste Ableitung der Leitfähigkeit in Abhängigkeit globaler Ladungsträgerdichten außerhalb der Potentialstufe  $n_1$  und der lokalen Barriere mit Länge  $L \approx 20\text{nm}$  und einer Stufenhöhe, welche durch top-gateinjizierte Ladungsträger mit Dichte  $n_2$  hervorgerufen wird. Die Fabry-Pérot-Oszillationen im bipolaren Bereich  $n_1 \cdot n_2 < 1$  sind gut erkennbar. Graphiken aus [24] und [25].*

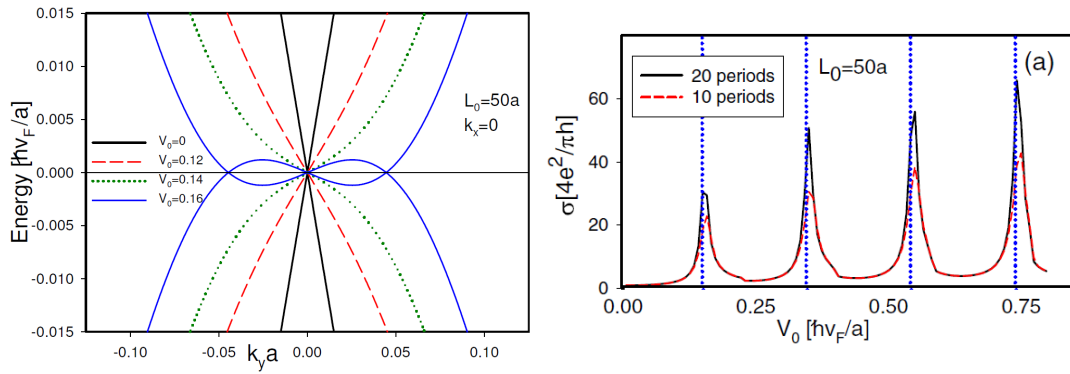
Experimentell kann dieses oszillatorische Verhalten mit Hilfe eines lokalen Top-gates nachgewiesen werden. Der rechte Graph in Abbildung 2.8 zeigt die Ableitung der Leitfähigkeit (entspricht hier einer Transmission)  $dG/dn_2$  nach der Ladungsträgerdichte im lokalen Topgatebereich  $n_2$  in Abhängigkeit von eben dieser Ladungsträgerdichte  $n_2$  (entspricht der Höhe des eingestellten Potentials im pnp-Übergang) und der global mit einem flächendeckenden Backgate eingestell-



ten Ladungsträgerdichte  $n_1$ , wobei das lokale Topgate eine Breite von etwa 20nm aufweist [25]. Während im unipolaren nn'- und pp'-Regime, entsprechend dem I. und III. Quadranten mit  $n_1 \cdot n_2 > 1$  keine Oszillationen auftreten, werden diese im bipolaren npn- und pnp-Regime entsprechend dem II. und IV. Quadranten mit  $n_1 \cdot n_2 < 1$  in der Ableitung der Leitfähigkeit deutlich sichtbar. Dieses Experiment bestätigt somit die theoretischen Vorhersagen von Fabry-Pérot-Oszillationen innerhalb eines npn/pnp-Übergangs in Graphen.

### 2.2.4. Übergittereffekte in Graphen

Während der Fokus der theoretischen Betrachtung in den Kapiteln 2.2.2 und 2.2.3 einzelnen pn- bzw. pnp-Übergängen galt, bietet die Aneinanderreihung dieser Potentialstufen ein weiteres, interessantes Objekt der Physik, nämlich Übergitterstrukturen in Graphen. Diese können einerseits mechanisch durch ein vorstrukturiertes Substrat [26] bzw. von Graphenlagen auf Bornitrid [27] entstehen oder andererseits durch lokale Gatestrukturen verursacht werden [28].



**Abbildung 2.9:** Der linke Graph zeigt die Energiedispersion eines Graphenübergitters mit kosinusförmigem Potential der Periode  $L_0 = 50a$  mit  $a$  als Gitterkonstante des Graphens bei verschiedenen Potentialstärken. Durch größeres  $V_0$  werden die Energiebänder zunehmend parabolisch, bis sich schließlich bei genügend großen Potentialen wie  $V_0 = 0.16$  (blauer Graph) neue Diracpunkte bilden.

Der rechte Graph zeigt die Leitfähigkeit abhängig von der Potentialstärke zweier Proben verschiedener Länge für eine feste Periode  $L_0 = 50a$ . Die blaugepunkteten Linien an den Maxima der Leitfähigkeit sind identisch mit den Nullstellen der Besselfunktion  $J_0(\frac{2V_0}{\hbar v_F G_0})$ . Grafik aus [29].

Grundlage der theoretischen Betrachtung der Übergitter bildet der Graphen Hamiltonoperator

$$H = \hbar v_F \begin{pmatrix} V(x) & k_x - ik_y \\ k_x + ik_y & V(x) \end{pmatrix}, \quad (2.20)$$

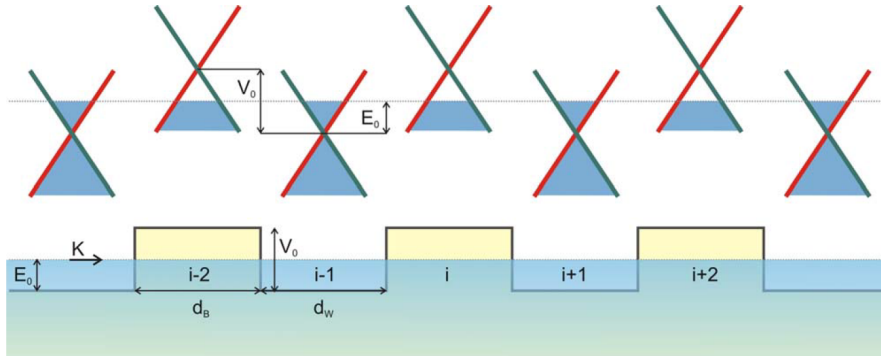
mit dem periodischen Potential  $V(x)$ . Für ein kosinusförmiges Potential  $V(x) = V_0 \cos G_0 x$  mit  $G_0 = \frac{2\pi}{L_0}$ , welches eine weitaus größere Periode als die Gitterkonstante in Graphen sowie eine Amplitude  $V_0$  kleiner als die Breite des  $\pi$ -Bandes besitzt, kann im Rahmen kleiner Wellenvektoren  $k_y$  senkrecht zur Transmissionsrichtung gezeigt werden, dass sich neue Diracpunkte in Graphen bilden. Diese genügen der Formel

$$J_0 \left( \frac{2V_0}{\hbar v_F G_0} \right) = 0, \quad (2.21)$$

wobei  $J_0$  eine Besselfunktion und  $v_F$  die Fermigeschwindigkeit ohne Potential darstellt [29]. Die Besonderheit dieser Theorie besteht darin, dass das Auftreten der neuen Diracpunkte nur von der Amplitude und der Länge  $V_0/G_0 = V_0 L_0/2\pi$  bestimmt wird. Es existieren damit  $2N + 1$  Diracpunkte in der Übergitterstruktur, wobei die natürliche Zahl  $N$  die Anzahl der Nullstellen der Besselfunktion  $J_0(x)$  mit  $|x| < \frac{2V_0}{\hbar v_F G_0}$  beschreibt.

Brey *et al.* konnten mit Hilfe der Transfer-Matrix-Methode unter der Annahme, dass metallische Kontakte durch stark dotiertes Graphen simuliert werden können, unter anderem die Leitfähigkeit aus den Transmissionswahrscheinlichkeiten sämtlicher Moden  $T_{k_y}$  berechnen (vgl. Abbildung 2.9) [29]. Auch hier hängt das Ergebnis im Prinzip nur von den Nullstellen der zugehörigen Besselfunktionen ab, an denen die Leitfähigkeit maximal wird.

Obwohl das oben vorgestellte Modell durch die Tatsache besticht, dass im Wesentlichen das Verhältnis von  $V_0/G_0$  die Lage der Diracpunkte und die Leitfähigkeit bestimmen, so beinhaltet die Theorie keine Asymmetrie des Potentials. Ausgehend von einem rechteckigen Potential, welches das Übergitter erzeugt, ergeben sich für Valenz- und Leitungsband weitere Besonderheiten.

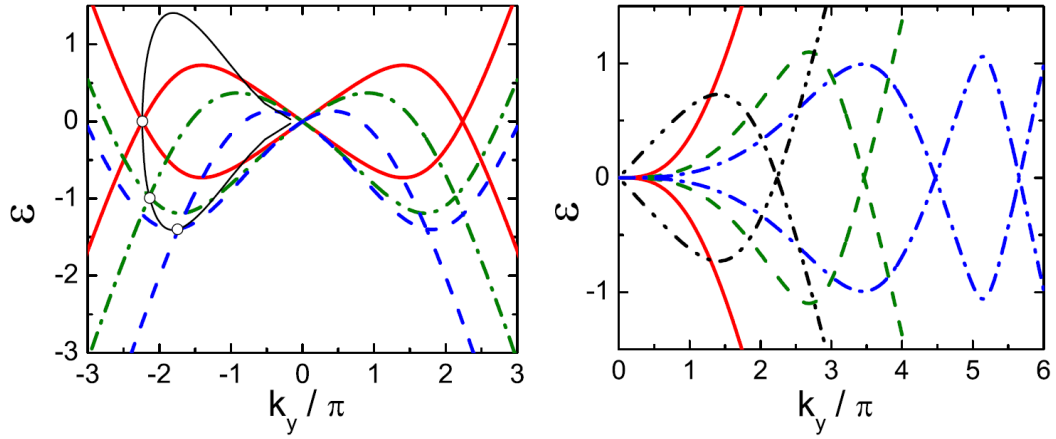


**Abbildung 2.10:** Modell eines Graphenübergitters mit rechteckigem Potential. Ein von links kommendes Elektron mit Energie  $E$  trifft auf mehrere Barrieren, dessen Breiten durch  $d_B$  und  $d_W$  bestimmt sind. Graphik aus [32].

Abbildung 2.10 zeigt ein rechteckiges, periodisches Potential

$$V(x) = \begin{cases} V_0 & \text{für } |x - x_{2i}| < \frac{d_B}{2} \\ 0, & \text{sonst.} \end{cases}, \quad (2.22)$$

mit  $x_{2i}$  als Zentrum der Barrieren und  $d_B$  als Breite einer Barriere (vgl. dazu [32]). Das Lösen der Schrödingergleichung  $(H - E)\psi = 0$  mit  $H$  äquivalent zu Gleichung 2.20 mit  $V(x)$  aus Gleichung 2.22 liefert ähnlich zu dem oben beschriebenen Fall einer kosinusförmigen Barriere Extra-Diracpunkte, also Berührungspunkte von Valenz- und Leitungsband, in  $k_y$ -Richtung. Während für den symmetrischen Fall  $d_B = d_W$  die zusätzlichen Berührungspunkte bei  $E = 0$  liegen, kann man für den asymmetrischen Fall  $d_B \neq d_W$  zeigen, dass die neuen Berührungspunkte von Valenz- und Leitungsband nicht mehr bei  $E = 0$  liegen [30] [31].



**Abbildung 2.11:** Dispersionsrelation eines rechteckigen Graphenübergitters. Während sich bei einer Asymmetrie des Übergitters abhängig des Verhältnisses  $d_B/d_W$  bei fixem Potential die Berührungspunkte der neuen Diracpunkte in das Valenz- bzw. Leitungsband schieben (linker Graph), liefert allgemein die Erhöhung der Potentialstärke neue Diracpunkte (rechter Graph, hier  $d_B = d_W$ ). Graphiken aus [30].

Abbildung 2.11 zeigt zum Einen auf der linken Seite die Dispersionsrelation entlang der  $k_y$ -Richtung für  $k_x = 0$  und einer fixen, einheitenlosen Potentialstärke  $u = 6\pi$  bestimmt durch  $u \rightarrow u_0 L = V_0 L / v_F \hbar$  abhängig von verschiedenen Verhältnissen der Breiten  $d_B/d_W = 0,5$  (rot),  $d_B/d_W = 0,6$  (grün) und  $d_B/d_W = 0,7$  (blau). Bei der gewählten Potentialstärke erhält man exakt zwei zusätzliche Diracpunkte, deren Lagen (illustriert durch die durchgezogene, schwarze Linie) für  $0 < d_B/d_W < 0,5$  im Valenzband,  $0,5 < d_B/d_W < 1$  im Leitungsband und wie gewohnt für ein symmetrisches Potential bei  $E = 0$  liegen.

Zum Anderen sieht man auf der rechten Seite von Abbildung 2.11 die Dispersionsrelation entlang der  $k_y$ -Richtung für  $k_x = 0$  im symmetrischen Potentialfall

$d_B/d_W = 0,5$  für größer werdende Potentialstärken  $u/2 = 4\pi$  (rot),  $u/2 = 6\pi$  (schwarz),  $u/2 = 8\pi$  (grün) und  $u/2 = 12\pi$  (blau) die Manifestation neuer Diracpunkte. Wie auch beim kosinusförmig-symmetrischen Potential [29] liegen diese bei  $E = 0$  und ihre Anzahl erhöht sich mit zunehmender Potentialstärke der Übergitterbarrieren.

Weiterhin ist es bei rechteckigen Potentialstufen möglich, mit Hilfe des Landauer-Büttiker-Formalismus aus der Transmission die Leitfähigkeit der Übergitterstrukturen zu bestimmen bzw. zu simulieren [30]-[33]. Im Folgenden soll die Transmission und Leitfähigkeit in Abhängigkeit der Anzahl der Barrieren  $N$  und eines im Modell eingebauten Unordnungsparameters  $\delta$  näher beleuchtet werden (vgl. dazu [32]). Die Ergebnisse daraus stellen eine Verknüpfung von Übergittern und pn-Übergängen dar (vgl. Kapitel 2.2.3).

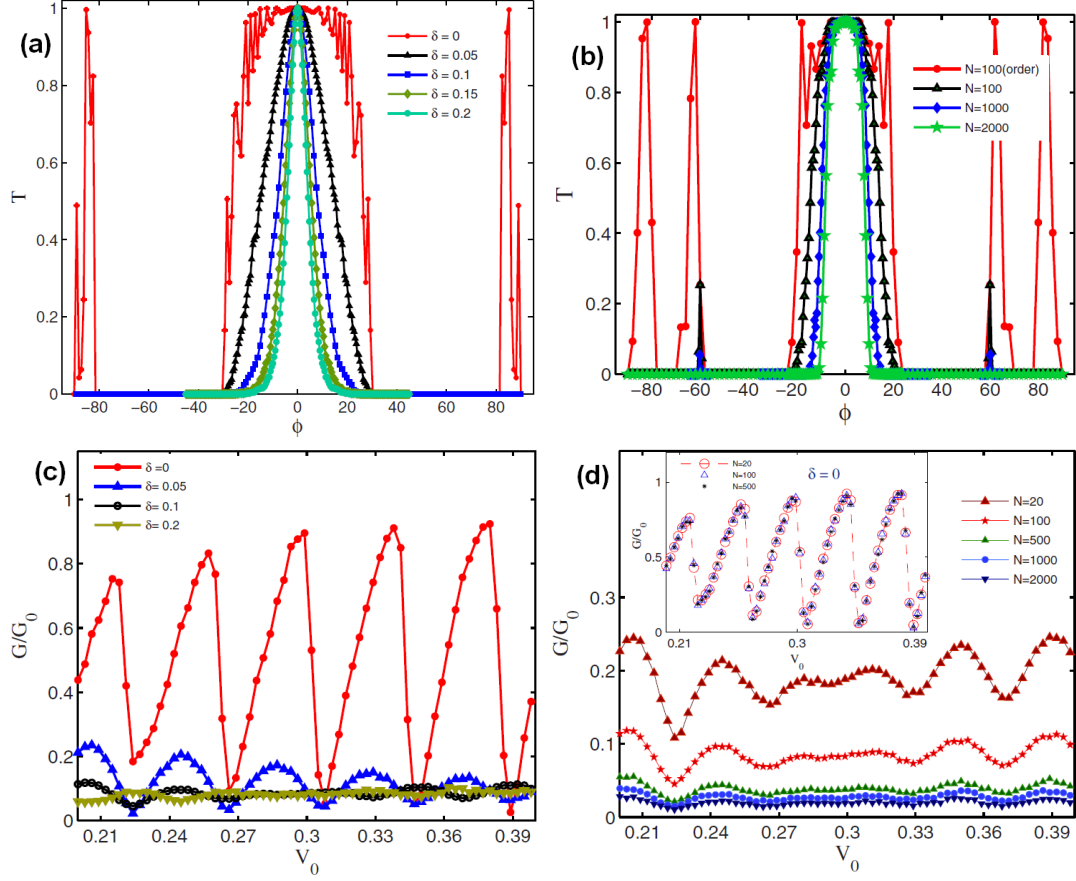
Die Graphen aus der Abbildung 2.12 zeigen jeweils zwei winkelabhängige Transmissionsspektren und zwei potentialabhängige Leitfähigkeiten. Die Winkelabhängigkeit der Transmissionen sind einerseits für verschiedene Unordnungsstärken  $\delta$  dargestellt, welche unmittelbar den ballistischen Transport beeinflussen. Die perfekte Transmission bei  $\phi = 0$  spiegelt den Klein-Tunnelprozess wider. Je höher die Unordnung und damit die Anzahl der Streuzentren wird, desto schmalbandiger wird der Bereich der perfekten Transmission bei  $\phi = 0$  und etwaige weitere Transmissionsmoden für  $\phi \neq 0$  werden unterdrückt (vgl. hierzu Abbildung 2.6).

Andererseits zeigt der rechte Transmissionsgraph die Abhängigkeit von der Anzahl der Barrieren. Auch hier gilt, ähnlich wie bei Erhöhung der Unordnung, dass ein großzahliges Übergitter die Haupttransmission schmalbandiger macht und weitere Transmissionsmoden weniger zur Gesamtleitfähigkeit beitragen.

Aufgrund der Fabry-Pérot-Resonanzprozesse innerhalb des Übergitters sieht man auch bei der potentialstufenabhängigen Leitfähigkeit Oszillationen. Dessen Amplituden nehmen mit zunehmender Unordnung des Systems sowie steigender Barrierenanzahl ab [32].

Die oben genannten Ergebnisse sind bedeutend für das Experiment, da sich in realen Graphenpräparaten Störstellen befinden und das Substrat, auf dem das Graphen liegt, einen entscheidenden Einfluss auf die elektronischen Transporteigenschaften besitzt. Aber auch die Tatsache, dass keine scharfkantigen Potentialbarrieren geschaffen werden können, stellen die Überprüfung dieser Theorie vor einige Herausforderungen.

Abschließend soll im Zusammenhang mit der Entstehung neuer Diracpunkte und der damit einhergehenden Verbiegung der Bänder weg von einem linearisierten Spektrum noch erwähnt werden, dass eine Anisotropie der Dirackegel in  $k_x$ -Richtung und  $k_y$ -Richtung entsteht. Konsequenterweise führt dies zu einer Betrachtung einer von der Richtung abhängigen Fermigeschwindigkeit in Graphenübergittern (vgl. dazu [34]).



**Abbildung 2.12:** Transmission und Leitfähigkeit in Graphen-Übergittern. Von links oben nach rechts unten sind dargestellt:

- (a) die winkelabhängige Transmissionswahrscheinlichkeit mit verschiedenen Unordnungsstärken  $\delta$  für  $N = 100$  Barrieren und einer Breite  $d_w = 10\text{nm}$ ,
- (b) die winkelabhängige Transmissionswahrscheinlichkeit mit verschiedenen Barrierenzahlen  $N$  für die Unordnungsstärke  $\delta = 0, 1$  und einer Breite  $d_w = 50\text{nm}$ ,
- (c) die von der Potentialstufe abhängige, relative Leitfähigkeit mit verschiedenen Unordnungsstärken  $\delta$  für  $N = 100$  Barrieren und einer Breite  $d_w = 10\text{nm}$ ,
- (d) die von der Potentialstufe abhängige, relative Leitfähigkeit mit verschiedenen Barrierenzahlen  $N$  für die Unordnungsstärke  $\delta = 0, 1$  (Inset:  $\delta = 0$ ) und einer Breite  $d_w = 10\text{nm}$ .

Graphiken aus [32].

## 2.3. Transportphänomene von Graphenstrukturen im Magnetfeld

### 2.3.1. Hall- und Quantenhalleffekt in Graphen

Bereits vor über 130 Jahren beschrieb Edwin Hall den Einfluss eines Magnetfeldes auf einen stromdurchflossenen Leiter [35]. Durch den nach ihm benannten Halleffekt ist es nicht nur möglich, die Ladungsträgerdichte, sondern auch das Vorzeichen der Ladungsträger im Festkörper zu bestimmen. Im Drude-Modell lässt sich der Gleichgewichtszustand des Systems von Ladungsträgern mit Masse  $m$  und Ladung  $e$  bei externen elektrischen und magnetischen Feldern  $\vec{E}$  und  $\vec{B}$  schreiben als

$$\frac{m\vec{v}_D}{\tau_m} = e \left[ \vec{E} + \vec{v}_D \times \vec{B} \right] , \quad (2.23)$$

wobei  $\tau_m$  die mittlere Streuzeit und  $v_D$  die Driftgeschwindigkeit der Ladungsträger darstellt. Betrachtet man ein zweidimensionales System mit Ausdehnung in  $\hat{x}$ - und  $\hat{y}$ -Richtung und ein darauf senkrecht stehendes Magnetfeld  $\vec{B} = B\hat{z}$ , führt die Berechnung der Komponenten vom spezifischen Widerstand und der Leitfähigkeit mit Hilfe des Ohmschen Gesetzes  $\vec{j} = \sigma \vec{E}$  ( $\vec{j}$ : Stromdichte,  $\sigma$ : Leitfähigkeitstensor) zu den Beziehungen zwischen longitudinalen und transversalen Komponenten [36] [37]

$$\begin{aligned} \sigma_{xx} &= \frac{\rho_{xx}}{\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2} , \\ \sigma_{xy} &= -\frac{\rho_{xy}}{\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2} . \end{aligned} \quad (2.24)$$

Aus den einzelnen Komponenten lassen sich experimentell bei bekannter Probengeometrie mit Länge  $L$  und Breite  $W$  sowie gemessener Längs- und Hallspannung  $V_x$  und  $V_H$  in einem mit Strom  $I$  durchflossenen Leiter die probencharakteristischen Merkmale Beweglichkeit und intrinsische Ladungsträgerdichte gemäß

$$\begin{aligned} n_s &= \left[ e \frac{d\rho_{yx}}{dB} \right]^{-1} = \frac{I}{e \frac{dV_H}{dB}} , \\ \mu &= \frac{1}{en_s \rho_{xx}} = \frac{IL}{en_s V_x W} \end{aligned} \quad (2.25)$$

bestimmen. Die quantenmechanische Betrachtung eines zweidimensionalen Elektronengases mit senkrecht angelegtem Magnetfeld liefert aufgrund der Bohr-Sommerfeld-Quantisierung eine Aufspaltung der Zustandsdichte in diskrete Energieniveaus. Diese Quantisierung in sogenannte Landaniveaus erfolgt aus der Betrachtung der stationären Schrödingergleichung

$$\left[ \frac{1}{2m} (\vec{p} + e\vec{A}(\vec{r}))^2 + V(z) \right] \Psi(\vec{r}) = E\Psi(\vec{r}) , \quad (2.26)$$

wobei  $\vec{A}$  das zugehörige Vektorpotential des Magnetfelds  $\vec{B}$ , welches senkrecht zum zweidimensionalen System verläuft, und  $V(z)$  das Quantisierungspotential in  $\hat{z}$ -Richtung darstellen. Die Lösung von Gleichung 2.26 liefert die quantisierten, äquidistanten Landauniveaus

$$E_n = \hbar\omega_c \left(n + \frac{1}{2}\right). \quad (2.27)$$

Dabei bezeichnet  $\omega_c$  die Zyklotronfrequenz im zweidimensionalen System und  $n \in \mathbb{N}_0$ . Gleichung 2.27 berücksichtigt hierbei nicht die Spinorientierung und die Gesamtenergie des Systems [37] [38].

Experimentell wurde der Quantenhalleffekt erstmals 1980 von Klaus von Klitzing an einem Si-MOSFET nachgewiesen. Jedes Landauniveau beinhaltet ohne Berücksichtigung jeweiliger Entartungen  $N_L = eB/h$  Ladungsträger. Falls die Ladungsträgerdichte im System klein genug ist und sich die Fermienergie des Systems zwischen zwei Landauniveaus befindet, so nimmt die Hall-Leitfähigkeit bei der Ladungsträgerdichte  $n$  unabhängig von Streuprozessen die Werte

$$\sigma_{xy} = -\frac{ne}{B} = -\frac{e^2}{h}i \approx -\frac{1}{25813\Omega}i \quad (2.28)$$

an. Die Leitfähigkeit in  $\hat{y}$ -Richtung hängt also nur noch von den Naturkonstanten der Elementarladung  $e$  und dem Planckschen Wirkungsquantum  $h$  ab ( $i \in \mathbb{N}$ ) [39]. Das Zustandekommen eines quantisierten Hallwiderstands und Oszillationen im Längswiderstand, dem sogenannten Shubnikov-de Haas-Effekt, kann mit dem Randkanalmodell erklärt werden. Die Ränder einer zweidimensionalen Probe führen dazu, dass sich die Energieniveaus an den Rändern hoch biegen. Daher kommt es zu eindimensionalen Randkanälen, in denen die Ladungsträger ohne Rückstreuung propagieren [37].

Das Randkanalbild liefert noch keine Erklärung für das Festhalten der Fermienergie zwischen den Landauniveaus. Hierfür kann man annehmen, dass die  $\delta$ -Peak förmige Zustandsdichte aufgrund von Störstellen und Verunreinigungen verbreitert ist und an ihrer Flanke sich lokalisierte Zustände befinden. Die Ladungsträger im Randkanal können nicht in die lokalisierten Zustände streuen und die Fermienergie wird im Bereich der Landauniveaus festgehalten [36].

Das Auftreten des Quantenhalleffekts in Graphen zeigt, dass es sich bei diesem Material wirklich um ein zweidimensionales System aus masselosen Dirac-Fermionen handelt [40]. Im Allgemeinen muss die in Gleichung 2.28 aufgeführte, quantisierte Leitfähigkeit mit einem Entartungsfaktor  $g$  multipliziert werden, welcher je nach Material verschiedene Werte annehmen kann. Ursächlich hierfür sind etwa der

Elektronenspin oder die Tatsache, dass mehrere gleichberechtigte Extrema in der Bandstruktur existieren [41].

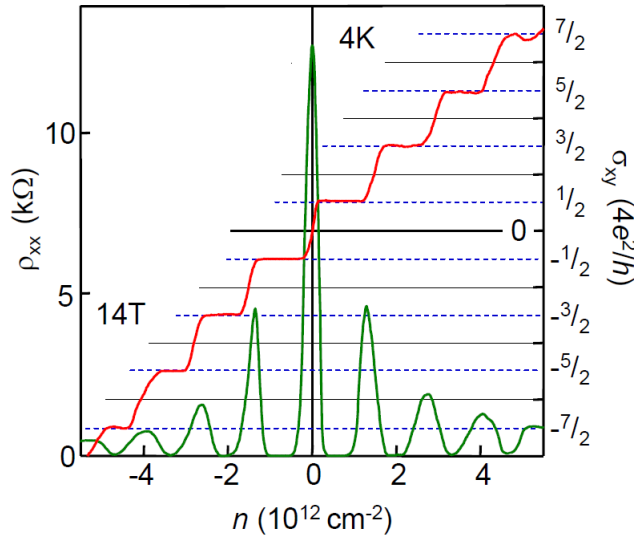
Die Ladungsträger in Graphen sind insgesamt vierfach entartet, was durch den realen Spin und den Pseudospin begründet ist. Zusätzlich lässt sich aufgrund der Ähnlichkeit des Graphensystems mit diracähnlichen Dynamiken zeigen, dass die Quantisierung der Hallleitfähigkeit halbzahlige erfolgt [42]:

$$\sigma_{xy} = \pm \frac{2e^2}{h} (2n + 1) . \quad (2.29)$$

Weiterhin folgt aus der Analogiebetrachtung zur Quantenelektrodynamik, dass sich die Landauniveaus in Graphen nicht mehr äquidistant wie in Gleichung 2.27 bilden, sondern der Formel

$$E_n = \text{sgn}(n) \sqrt{2e\hbar v_F^2 |n| B} \quad (2.30)$$

genügen, wobei  $n > 0$  ein elektronartiges und  $n < 0$  ein lochartiges Landauniveau beschreibt [43].



**Abbildung 2.13:** Quantenhalleffekt in einer Graphenmonolage am Beispiel einer Modulation der Ladungsträgerdichte  $n$  bei einem Magnetfeld von  $B = 14\text{T}$  und Temperatur  $T = 4\text{K}$ . Die Minima der Shubnikov-Haas-Oszillationen im Längswiderstand (grüner Graph) folgen den halbzahligen Plateaus im Hallwiderstand (roter Graph). Grafik aus [40].

Abbildung 2.13 zeigt Längs- und Hallwiderstand einer Graphenmonolage. Die Besonderheit im Hallwiderstand zeigt sich durch die halbzahligen Werte und den dazugehörigen Quantenhallfüllfaktoren  $\nu = \pm 2, \pm 6, \pm 10, \text{etc.}$  und das Fehlen des Plateaus bei  $E_n = 0$ . Letzteres kann auf zweierlei Arten erklärt werden. Einerseits wird der Grundzustand von Löchern und Elektronen unterschiedlicher Chiralität gefüllt und das erste Plateau erscheint bereits bei halber Füllung des untersten Landauniveaus [41]. Andererseits verursacht der unter dem Magnetfeld rotierende Pseudospin einen zusätzlichen Phasensprung von  $\pi$  in der Zyklotronbewegung der

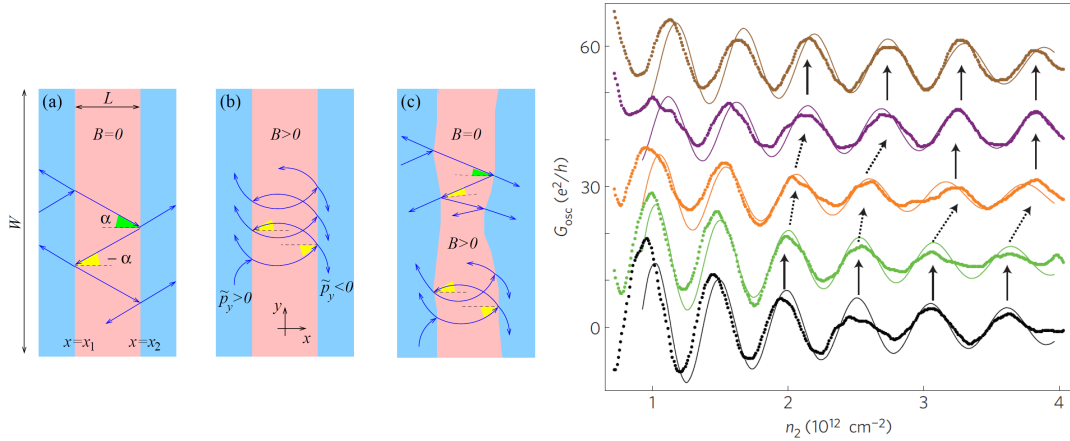


Ladungsträger. Daraus resultiert eine halbzahlige Folge der Energieniveaus und das damit einhergehende Fehlen des Plateaus bei  $E_n = 0$ .

Bemerkenswert ist zudem das Auftreten des Quantenhalleffekts bei Raumtemperatur. Durch die Quantisierung der Landauniveaus gemäß Gleichung 2.30 würde die Energiedifferenz zwischen dem nullten und dem ersten Niveau bei einem Magnetfeld von  $B = 45\text{T}$  einer Temperatur von  $2800\text{K}$  entsprechen. Auch die hohe Ladungsträgerdichte der Diracfermionen spielt hier eine wesentliche Rolle [44].

### 2.3.2. Graphen pn-Übergänge im Magnetfeld

In Kapitel 2.2 wurden pn-Übergänge ohne Magnetfeld behandelt. Insbesondere wurden in den dazugehörigen Theorien nicht gekrümmte Trajektorien angenommen. Im Allgemeinen führt ein äußeres, magnetisches Feld aufgrund der Lorentzkraft zu einer kreisförmigen Bewegung der Ladungsträger. Werden diese nun mehrfach in einer pnp-Heterostruktur reflektiert, kommt es im Fabry-Pérot-Bild unmittelbar zu einer Auswirkung auf die Phasenverschiebung  $\Delta\theta$  aus Gleichung 2.18.



**Abbildung 2.14:** *Phasenverschiebung der Leitfähigkeitsoszillationen abhängig vom Magnetfeld. Unabhängig etwaiger, geringer Inhomogenitäten an der Grenzfläche ändert sich ab einer gewissen Magnetfeldstärke das Vorzeichen des Auftreffwinkels  $\alpha$ . Die damit einhergehende Phasenverschiebung wird im Experiment durch eine halbpériodische Verschiebung der Fabry-Pérot-Oszillationen deutlich. Grafiken aus [24] und [25].*

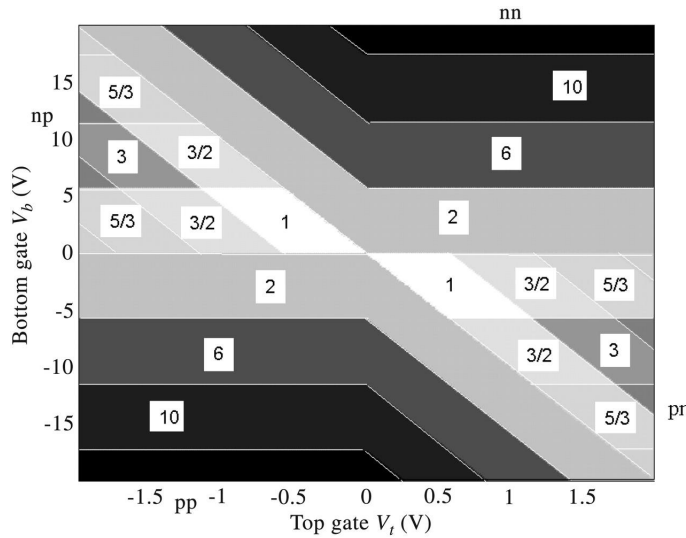
Der linke Teil von Abbildung 2.14 zeigt Transmission und Reflexion von Ladungsträgern in einer pnp-Graphenheterostruktur. Ohne Magnetfeld bzw. bei kleinen Magnetfeldern heben sich die Phasen der Rückreflexion  $\theta_1$  und  $\theta_2$  gegenseitig auf (Bild (a)), da das Vorzeichen des Reflexionswinkels  $\alpha$  bei beiden Grenzflächen unterschiedlich ist. Bedingung hierfür ist eine genügend kleine  $\hat{y}$ -Komponente

$$-\frac{eBL}{2} < p_y < +\frac{eBL}{2}, \quad (2.31)$$

wobei  $L$  die Barrierenbreite darstellt. Für größere Magnetfelder führt eine zunehmende Bahnkrümmung dazu, dass das Vorzeichen des Einfallswinkels  $\alpha$  auf beiden Seiten der Barriere gleich wird, was einen zusätzlichen Phasensprung von  $\pi$  in  $\theta_1 + \theta_2$  verursacht. Zusätzlich kann gezeigt werden (vgl. Abbildung 2.14 c)), dass eine mäßige Barriereninhomogenität das Vorzeichen des Reflexionswinkels nicht ändert [24].

Der rechte Graph in Abbildung 2.14 zeigt eine Messung der Leitfähigkeit in Abhängigkeit der Ladungsträgerdichte unterhalb der Barriere für unterschiedliche Magnetfelder. In diesem Experiment wurde für eine Magnetfeldstärke von etwa 800mT eine Verschiebung der Oszillationen um eine halbe Periode festgestellt. Dies ist eine unmittelbare Konsequenz der gekrümmten Trajektorien ab  $p_y > |\frac{eBL}{2}|$  und der damit einhergehenden, zusätzlichen Phasenverschiebung aufgrund der Reflexion innerhalb der Barrierenwand.

Bei größeren Magnetfeldern kommt es schließlich zum quantisierten Transport, wobei es zwischen einem reinen pn-Übergang und einer pnp-Barriere zu unterschiedlichen Effekten kommt. Zunächst soll ein reiner pn-Übergang im Quantenhallregime näher erörtert werden. Die p- und n-artigen Randkanäle können entlang der Barriere miteinander interferieren, da diese im Quantenhallregime unterschiedliche Chiralität aufweisen. Da auch keine Rückstreuung stattfindet, führt dies zu einer Modenmischung mit gebrochenzahligen Füllfaktoren [45].



**Abbildung 2.15:** Zweipunktleitfähigkeit eines pn-Übergangs. Die Anzahl der Moden in beiden Bereichen wird durch eine globale Backgatespannung  $V_b$  (hier als Bottom gate bezeichnet) und eine Topgatespannung  $V_t$  bestimmt. Grafik aus [46].

Abbildung 2.15 zeigt die Mischung der Moden. Grundlage der Betrachtung bildet ein pn-Übergang, der durch ein lokales Topgate erzeugt wird, welches eine Hälfte der Probe bedeckt. Zudem können die Gesamtmoden im System durch ein globales

Backgate bestimmt werden. Für die Mischung der Randkanäle gilt es, unipolares und bipolares Regime zu unterscheiden.

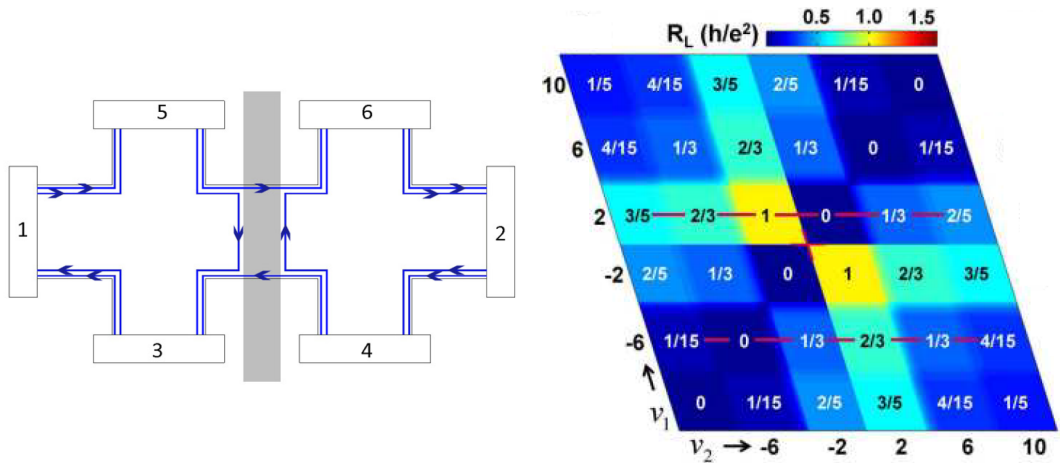
Für den Fall einer pn-/np-Barriere zirkulieren die Randkanäle in unterschiedlichen Richtungen. Das bedeutet, dass sie entlang der pn-Barriere in der gleichen Richtung propagieren. Es kommt zu einer quantisierten Leitfähigkeit gemäß

$$\sigma = \frac{|\nu_1||\nu_2|}{|\nu_1| + |\nu_2|} \cdot \frac{e^2}{h}, \quad (2.32)$$

wobei  $\nu_1$  und  $\nu_2$  die Füllfaktoren von Graphenmonolagen mit den bereits aus Kapitel 2.3.1 bekannten Werten  $\nu = \pm 2, \pm 6, \pm 10, \text{etc.}$  darstellen. Für unipolare Barrieren nn' und pp', in denen die Randkanäle ohne Rückstreuung oder Mischung in dieselbe Richtung laufen, tragen die Zustände mit den höchsten Füllfaktoren aufgrund interner Zirkulation nicht zum Gesamttransport über die Barriere bei und die Leitfähigkeit wird durch die Region mit dem geringsten Füllfaktor bestimmt [46] [47]:

$$g = \min(|\nu_1|, |\nu_2|) \cdot \frac{e^2}{h}. \quad (2.33)$$

Nun soll der Fall eines schmalen pnp-Übergangs näher betrachtet werden, wie er zum Beispiel durch ein lokales Topgate erzeugt werden kann. Die Gesamtleitfähigkeit, erzeugt durch die Moden, kann mit dem Landauer-Büttiker-Formalismus bestimmt werden.



**Abbildung 2.16:** Mischung der Randkanäle in einer Graphenheterostruktur. Exemplarisch ist hier ein Randkanalschema mit verschiedenen Moden außerhalb und innerhalb einer Barriere (grau schraffierter Bereich) skizziert. Der durch die Modenmischung hervorgerufene Längswiderstand hängt nun im Vergleich zum gewöhnlichen pn-Übergang von verschiedenen Äquilibrierungsbedingungen der beteiligten Randkanäle ab. Grafiken aus [48] und [49].

Das linke Bild in Abbildung 2.16 zeigt schematisch eine Graphen-Hallbar mit sechs Kontakten und einem lokalen Gate in der Mitte. Durch unterschiedliche Ladungsträgerkonzentrationen innerhalb und außerhalb der topgegateten Region sind die Anzahl der Randkanäle und der Füllfaktor unterschiedlich. Die Messung von Längs- (z. B. Kontakte 5 und 6) und Diagonalspannung (z. B. Kontakte 5 und 4) bringt Aufschluss über die am Transport beteiligten Moden.

Das rechte Bild in Abbildung 2.16 zeigt die Werte der Längswiderstände einer pnp-Struktur abhängig der Füllfaktoren im gegateten Regime  $\nu_2$  und dem nicht gegateten Bereich  $\nu_1$  und liefert für einige Bereiche Unterschiede zum einfachen pn-Übergang (vgl. Abbildung 2.15). Für die Berechnung des Widerstands im Landauer-Büttiker-Formalismus werden für die Graphenheterostruktur drei Fälle unterschieden [49]:

1. das Randzustandstransmissionsregime bei gleicher Art Ladungsträger innerhalb und außerhalb der Barriere und größerer Modenzahl außerhalb der Barriere:  
 $\nu_1 \cdot \nu_2 > 0$  und  $|\nu_1| \geq |\nu_2|$ ,
2. das partielle Gleichgewichtsregime bei gleicher Art Ladungsträger innerhalb und außerhalb der Barriere und kleinerer Modenzahl außerhalb der Barriere:  
 $\nu_1 \cdot \nu_2 > 0$  und  $|\nu_1| < |\nu_2|$ ,
3. das komplette Gleichgewichtsregime bei unterschiedlicher Art Ladungsträger innerhalb und außerhalb der Barriere:  
 $\nu_1 \cdot \nu_2 < 0$ .

Übertragen auf die longitudinale Leitfähigkeit bedeutet dies eine Formierung effektiver, fraktioneller Füllfaktoren gemäß

$$\begin{aligned}\sigma_L &= \frac{|\nu_1||\nu_2|}{|\nu_1| - |\nu_2|} \cdot \frac{e^2}{h} \text{ für } \nu_1 \cdot \nu_2 > 0 \text{ und } |\nu_1| \geq |\nu_2| , \\ \sigma_L &= \frac{|\nu_1||\nu_2|}{|\nu_2| - |\nu_1|} \cdot \frac{e^2}{h} \text{ für } \nu_1 \cdot \nu_2 > 0 \text{ und } |\nu_1| < |\nu_2| , \\ \sigma_L &= \frac{|\nu_1||\nu_2|}{|\nu_1| + |\nu_2|} \cdot \frac{e^2}{h} \text{ für } \nu_1 \cdot \nu_2 < 0 .\end{aligned}\tag{2.34}$$

Jedoch kann dieses Modell nicht alle im Experiment auftretenden Plateaus erklären. So können für den Fall bei  $|\nu_1| = 6, |\nu_2| = 2$  mit  $\nu_1 \cdot \nu_2 > 0$  weitere Widerstandsplateaus erkannt werden, wenn  $|\nu_2|$  das Vorzeichen wechselt. Hierfür gibt es einen Erklärungsansatz, welcher die Vermutung nahe legt, dass sich für diesen Grenzfall die Moden nicht komplett mischen [49].

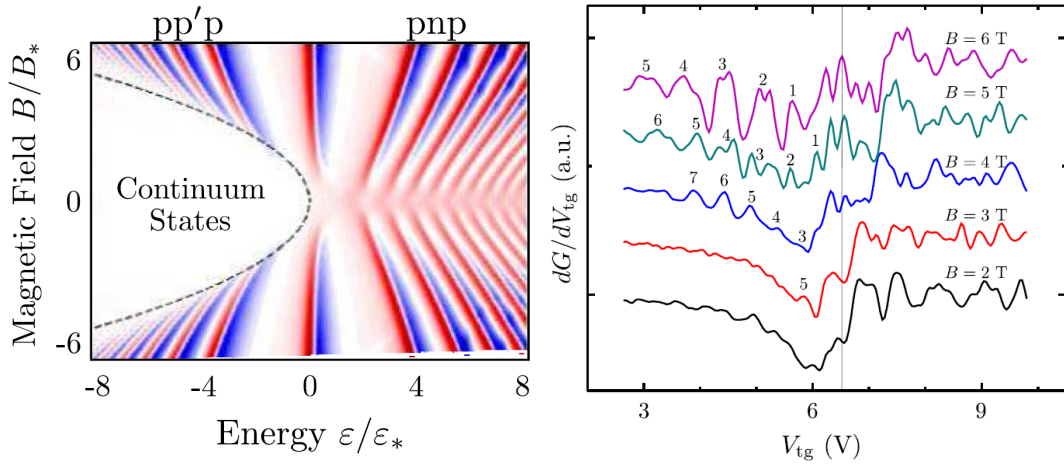
Unabhängig von der Bildung neuer Quantenhallplateaus kann gezeigt werden, dass Shubnikov-de Haas-Oszillationen im unipolaren Regime einer Graphenheterostruktur abrupt verschwinden, wenn die Magnetfeldstärke unter ein kritisches Niveau gefahren wird [50]. Für pn-Übergänge kann dies sowohl für parabolische

als auch lineare Potentiale der Form  $U(x) = -ax^2$  und  $U(x) = -eEx$  beschrieben werden, indem man das jeweilige, repulsive Potential dem magnetischen Confinement entgegenstellt. Im semiklassischen Bild werden die Quantenoszillationen des Systems genau dann unterdrückt, wenn sich geschlossene Zyklotronbahnen in offene Trajektorien verwandeln, sobald die Lorentzkraft schwach im Vergleich zum repulsiven Barrierenpotential wird [50].

Abbildung 2.17 zeigt linkerhand die lokale Zustandsdichte  $dN/d\epsilon$  in der Mitte der Barriere abhängig von natürlichen, dimensionslosen Magnetfeld- und Energieeinheiten  $\epsilon_* = (\hbar^2 v_F^2 a)^{1/3}$  und  $B_* = \frac{\hbar}{e} (\frac{a}{v_F \hbar})^{2/3}$  mit  $a$  als Stärke des parabolischen Potentials  $U(x) = -ax^2$ . An der gestrichelten, schwarzen Linie, welches das kritische Feld

$$B_c(\epsilon) = \frac{2}{ev_F} \sqrt{-a\epsilon} \quad (2.35)$$

markiert, erkennt man den Übergang von diskreten Werten zu einem Kontinuum. Der rechte, experimentelle Graph in Abbildung 2.17 zeigt die Ableitung der Leitfähigkeit nach der Topgatespannung, mit der die Potentialstärke moduliert wird, in Abhängigkeit von eben dieser zu verschiedenen Magnetfeldstärken. Während sich im pp'-p-Regime bei Magnetfeldern  $B > 3T$  bis zu sieben Shubnikov-de Haas-Maxima zeigen, werden diese unter einer kritischen Magnetfeldstärke unterdrückt, was der Umwandlung der geschlossenen Zyklotronbahnen in offene Trajektorien im Kontinuumbereich der Zustandsdichte entspricht.

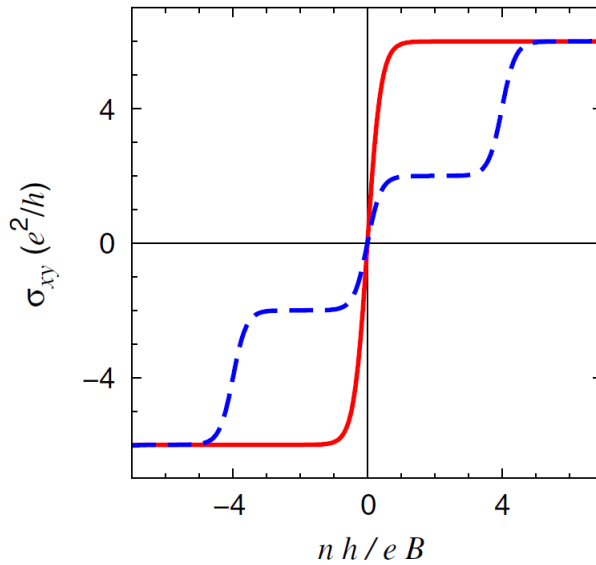


**Abbildung 2.17:** Kollaps der Landauniveaus innerhalb eines pp'-p-Regimes. Die theoretische Betrachtung der Ableitung der Zustandsdichte zeigt, dass es bei einem kritischen Magnetfeld zu einem Kontinuum kommt (linker Graph). Experimentell wird dies im rechten Graphen deutlich, wobei unterhalb des kritischen Feldes von etwa 3T die Shubnikov-de Haas-Oszillationen verschwinden. Grafik aus [50].

### 2.3.3. Graphen-Übergitter im Magnetfeld

Für das Transportverhalten in Graphenübergittern mit äußerem Magnetfeld stehen zwei grundlegende Fragen im Vordergrund. Zum Einen, welchen Einfluss die in Kapitel 2.2.4 beschriebenen zusätzlichen Diracpunkte einer sich in einem periodischen Potential befindenden Graphenstruktur auf den quantisierten Transport und die Formierung von Landauniveaus besitzen. Zum Anderen soll geklärt werden, welche Besonderheiten sich für mögliche Kommensurabilitätseffekte in einem Graphenübergitter ergeben.

Zunächst soll die Bildung der Landauniveaus erläutert werden. Als Übergittermodell betrachtet man ein Rechteckpotential gemäß Gleichung 2.22. Der Einfachheit halber soll das Potential symmetrisch um  $E_F = 0$  und die Breiten der beiden Abschnitte sollen gleich sein:  $d_W = d_B$ . Diese Konfiguration bewirkt je nach Potentialstärke eine Erhöhung der Anzahl der Diracpunkte um  $2N$  entlang der  $\hat{y}$ -Richtung, wobei sich alle Punkte bei  $E_F = 0$  berühren (vgl. Kapitel 2.2.4). Die Bildung der neuen Diracpunkte hat einen unmittelbaren Einfluss auf die Entartung des nullten Landauniveaus. Sobald das Potential die Stärke erreicht, um 2 neue Diracpunkte zu formen, erhöht sich auch die Entartung des nullten Landauniveaus um 2. Insgesamt lässt sich dieser Entartungsgrad als  $4(2N+1)$  mit  $N \in \mathbb{N}$  schreiben [51].



**Abbildung 2.18:** Hallleitfähigkeit eines Graphenübergitters abhängig von der Potentialstärke. Die blaue gestrichelte Linie zeigt eine intrinsische Graphenprobe mit vierfacher Entartung im Quantenhallregime mit den Füllfaktoren  $\pm 2$  und  $\pm 6$ . Bei der Formation zweier zusätzlicher Diracpunkte nimmt die Entartung den Wert 12 an und die beiden Plateaus bei  $\pm 2$  verschwinden. Grafik aus [51].

Abbildung 2.18 zeigt die Auswirkung der zusätzlichen Diracpunkte im Quantenhallregime auf die Hallleitfähigkeit. Die blaue gestrichelte Linie zeigt den erwarteten Quantenhalfeffekt für intrinsisches Graphen mit der gewohnten 4fach Entartung inklusive der halbzahligen Stufen (vgl. Kapitel 2.3.1). Für den roten Graph in Abbildung 2.18 wurde eine Potentialstärke gewählt, die zwei zusätzliche Diracpunkte in der Bandstruktur erzeugt. Dadurch steigt auch der Entartungsgrad des nullten

Landauniveaus gemäß  $4(2N+1)$  auf insgesamt 12, was sich in der Plateaustufe von  $-6e^2/h$  auf  $+6e^2/h$  widerspiegelt [51].

Des Weiteren ist die Auswirkung eines schwachen Magnetfeldes auf ein Übergitter insofern interessant, da weitere Oszillationen im Magnetowiderstand auftauchen. Diese Kommensurabilitätsoszillationen können sowohl bei einem lateral strukturierten, zweidimensionalen System mit schwacher Modulation [52] als auch in einem periodischen Antidotgitter auftreten [53], sofern die Periode kleiner als die mittlere freie Weglänge der Ladungsträger ist. Für eine laterale Modulation können die Oszillationen vereinfacht geschrieben werden als

$$\Delta B = \frac{ea}{2\hbar k_F}, \quad (2.36)$$

wobei  $k_F$  den Fermiwellenvektor und  $a$  die Periode des Übergitters darstellt [52]. Im Falle von Graphenstrukturen bildet die Grundlage der theoretischen Berechnung von Kommensurabilitätsoszillationen der aus den vorherigen Kapiteln bekannte und für ein externes Magnetfeld modifizierte Hamiltonoperator  $H_0 = v_F \sigma (-i\hbar \nabla + \frac{e}{c} \vec{A})$ . Der Gesamtoperator  $H = H_0 + U(x)$  wird durch eine schwache Modulation  $U(x) = V_0 \cos(2\pi x/a_0)$  ergänzt. Betrachtet man  $U(x)$  als kleine Störung des Systems, so kann man die diffusive Leitfähigkeit als lineare Antwort eines externen Feldes bestimmen. Dies führt zu Kommensurabilitätsoszillationen in Graphen, die sich von denen in gewöhnlichen zweidimensionalen Systemen mit parabolischer Dispersion unterscheiden, da diese nämlich stärker ausgeprägt sowie temperaturstabiler sind [54]. Dies wurde im Experiment bisher noch nicht bestätigt.

Der Magnetotransport in modulierten Graphenproben wurde in weiteren Arbeiten theoretisch im diffusen Transport gut erörtert [55] [56]. Eine experimentelle Herausforderung zur Beobachtung von Kommensurabilitätsoszillationen besteht darin, dass die mittlere freie Weglänge länger als die Periode des Übergitters sein muss. Während dies bei unstrukturierten Graphenproben, entweder freischwebende oder auf Bornitrid transferierte Graphenlagen, durchaus der Fall sein mag, bedeutet eine Strukturierung wie das Anbringen eines Topgates oder das Ätzen von Löchern in Graphen alleine durch die nötigen Prozessierungsschritte eine beträchtliche Minderung der mittleren freien Weglänge.

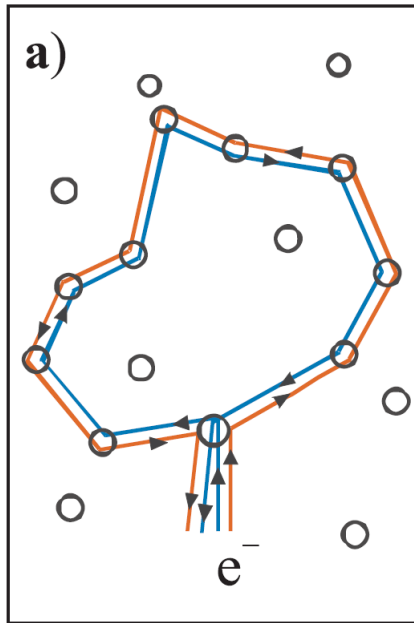
### 2.3.4. Schwache Lokalisierung

Bei der Betrachtung magnetfeldabhängiger Transporteigenschaften kommt es unter Berücksichtigung phasenkohärenter Interferenzeffekte zu Korrekturen in der Leitfähigkeit. Insbesondere spielen die im nächsten Kapitel 2.3.5 beschriebenen universellen Leitwertfluktuationen und die im Folgenden näher betrachtete schwache Lokalisierung eine wesentliche Rolle.

Ausgehend vom diffusiven Transport bleibt bei einem elastischen Streuprozess die Phaseninformation des Ladungsträgers erhalten, während sie bei einem inelastischen Streuprozess verloren geht. Betrachtet man einen Pfad eines Ladungsträgers, welcher von einem Punkt verschiedene Streuprozesse bis zum Ursprung durchläuft (vgl. Abbildung 2.19), so können die beiden gegenläufigen Trajektorien in Materialien ohne Spin-Bahn-Kopplung miteinander konstruktiv interferieren. Der Ladungsträger ist somit lokalisiert und die Leitfähigkeit sinkt [57] [58].

Durch den Einfluss eines äußeren Magnetfelds wird die Zeitumkehrsymmetrie gebrochen, was zu einer Zerstörung der Interferenz führt. Der Ladungsträger ist nicht länger lokalisiert und die Leitfähigkeit steigt.

Schwache Lokalisierung hängt speziell in Graphen nicht nur von inelastischen und damit phasenbrechenden Streuprozessen, sondern auch von elastischen Streumechanismen ab [59]. Ausschlaggebend hierfür ist die Chiralität der Ladungsträger, welche ihnen eine zusätzliche Phase von  $\pi$  verleiht. Elastische Streuprozesse haben direkten Einfluss auf die Chiralität und somit müssen sie neben den inelastischen Prozessen für die Korrektur der Leitfähigkeit der schwachen Lokalisierung berücksichtigt werden.



**Abbildung 2.19:** Elektronentrajektorien im diffusiven Regime. Die im Bild gelb und blau dargestellten, gegenläufigen Pfade können miteinander interferieren und führen zu einer Lokalisierung des Elektrons und damit einer geringeren Leitfähigkeit. Grafik aus [58].

Eine Berechnung der Leitfähigkeitskorrektur durch schwache Lokalisierung abhängig von den verschiedenen Streuraten liefert für Graphenmonolagen [60]:

$$\delta\sigma(B) = \frac{e^2}{\pi h} \left[ F\left(\frac{B}{B_\varphi}\right) - F\left(\frac{B}{B_\varphi + 2B_i}\right) - 2F\left(\frac{B}{B_\varphi + B_*}\right) \right]. \quad (2.37)$$

Dabei sind im Einzelnen  $F(z) = \ln z + \psi(0,5 + z^{-1})$ ,  $\psi$  die Digammafunktion, die einzelnen Streuraten  $B_{\varphi,i,*} = \frac{\hbar}{4De} \tau_{\varphi,i,*}^{-1}$  und  $D$  die Diffusionskonstante. Die aus-



schlaggebenden Zeiten sind die Phasenkohärenzzeit  $\tau_\varphi$ , die Intervalleystreuzzeit  $\tau_i$  und die Intravalleystreuzzeit  $(1/\tau_w + 1/\tau_z)^{-1}$ , wobei letztere aus der Streuzzeit des triagonalen Warpings  $\tau_w$  und weiteren Streuprozessen  $\tau_z$  zusammengesetzt ist. Die Gesamtstreuzzeit setzt sich aus  $\tau_*^{-1} = \tau_w^{-1} + \tau_z^{-1} + \tau_i^{-1}$  zusammen und die dazugehörigen Längen sind über die Diffusionskonstante verknüpft:  $L_{\varphi,i,*} = \sqrt{D\tau_{\varphi,i,*}}$ . Abhängig von den Leitfähigkeitskorrekturen in Gleichung 2.37 kann man Aufschluss darüber erhalten, welche Streuprozesse in Graphen dominieren. Bei Dominanz von Inter- und Intravalleystreuprozessen überwiegt in Gleichung 2.37 der erste Term und die Leitfähigkeitskorrektur wird positiv, während für  $\tau_{i,*} \rightarrow \infty$  der dritte Term in Gleichung 2.37 überwiegt.

### 2.3.5. Universelle Leitwertfluktuationen

Neben der in Kapitel 2.3.4 vorgestellten, schwachen Lokalisierung führen Ladungsträgerinterferenzeffekte in mesoskopischen Systemen zu universellen Leitwertfluktuationen. Diese Fluktuationen in der Größenordnung  $e^2/h$  entstehen dabei durch die Interferenz der Summe aller möglichen Trajektorien im System. Sie sind daher für jede Probe universell und gelten als magnetischer Fingerabdruck eines mesoskopischen Systems [61].

Eine zentrale Größe zur Charakterisierung der universellen Leitwertfluktuationen stellt die Standardabweichung der Leitfähigkeit abhängig des Magnetfeldes dar:

$$\Delta G_{rms} = \sqrt{\text{var}(G)} = \sqrt{\langle (G - \langle G \rangle)^2 \rangle} . \quad (2.38)$$

Ein Nachteil aus der Bestimmung der Phasenkohärenzlänge in Graphen durch die Standardabweichung der Leitfähigkeit besteht darin, dass diese unmittelbar an die verschiedenen Streumechanismen gekoppelt ist. Eine analytische Untersuchung der universellen Leitwertfluktuationen unter der Annahme kleiner Unordnung im diffusiven Transport zeigt, dass die Standardabweichung stark von elastischen Streuprozessen abhängig ist und ohne diese den vierfachen Wert von gewöhnlichen Metallen annehmen kann [62]. Insbesondere spielen Intervalley-Streuung und die Probendimension eine gewichtige Rolle beim Vorfaktor der Standardabweichung der Leitfähigkeit [63].

Eine weitere und durchaus bessere Analysemöglichkeit der Phasenkohärenzlänge bietet die Untersuchung der Autokorrelationsfunktion der Leitfähigkeit. Diese Methode stellt sich als unabhängig von den oben genannten Faktoren heraus [64]. Grundlage dieser Betrachtung bildet die Ergodenhypothese. Eine genügend große Änderung der Fermienergie oder des Magnetfelds ist äquivalent zu einer kompletten Änderung der Störstellenkonfiguration [57]. Die Korrelationsfelder sind in der Regel genügend klein, so dass die statistischen Eigenschaften nicht durch eine Erhöhung des Magnetfelds verändert werden. Die Autokorrelationsfunktion für das Magnetfeld ist wie folgt definiert [57]:

$$F_G(\Delta B) = \int_a^b dB G(B) \cdot G(B + \Delta B) . \quad (2.39)$$

Für die Berechnung der Phasenkohärenzlänge  $L_\varphi$  ist das Korrelationsfeld  $B_c$  entscheidend. Dieses ist über die Halbwertsbreite von Gleichung 2.39 definiert

$$F_G(B_c) = \frac{1}{2} F_G(0) \quad (2.40)$$

und beschreibt diejenige Magnetfeldstärke, bei der ein einzelnes Flussquant  $h/e$  von einer maximal phasenkohärenten Fläche  $A$  eingeschlossen ist. Vereinfacht kann man den Zusammenhang zwischen  $B_c$  und  $L_\varphi$  schreiben als

$$B_c = 2\pi C \frac{h}{eA} , \quad (2.41)$$

wobei der Vorfaktor im Bereich  $0,42 < C < 0,95$  liegt und die Fläche je nach Probenbreite  $W$  entweder  $A = L_\varphi^2$  für  $L_\varphi \leq W$  oder  $A = L_\varphi \cdot W$  für  $L_\varphi \geq W$  beträgt [57]. Die Autokorrelationsmethode mit dem Ergebnis aus Gleichung 2.41 bietet damit eine gute Näherungsbestimmung der Phasenkohärenzlänge in Graphenproben.

### **3. Prozessierungsverfahren und Messmethoden von Graphenproben mit strukturierten Topgates**

In diesem Abschnitt soll auf die Herstellung von Graphenproben mit strukturierten Topgates eingegangen werden. Als erstes werden dabei die Methoden für die Exfoliation und die für die Prozessierung einer Hallbar benötigten Lithographieschritte näher erläutert. Das Hauptaugenmerk gilt anschließend der Fertigung und Herstellung sowohl stabiler Topgatedielektrika aus Aluminiumoxid als auch der Strukturierung des Topgates selbst mit zweidimensionalen Säulenarrays und Linienübergittern. Abschließend werden noch Messaufbau und -methoden sowie das verwendete Kryostatensystem erläutert.

#### **3.1. Herstellung und Kontaktierung von Graphenhallbars auf SiO<sub>2</sub>-Wafers**

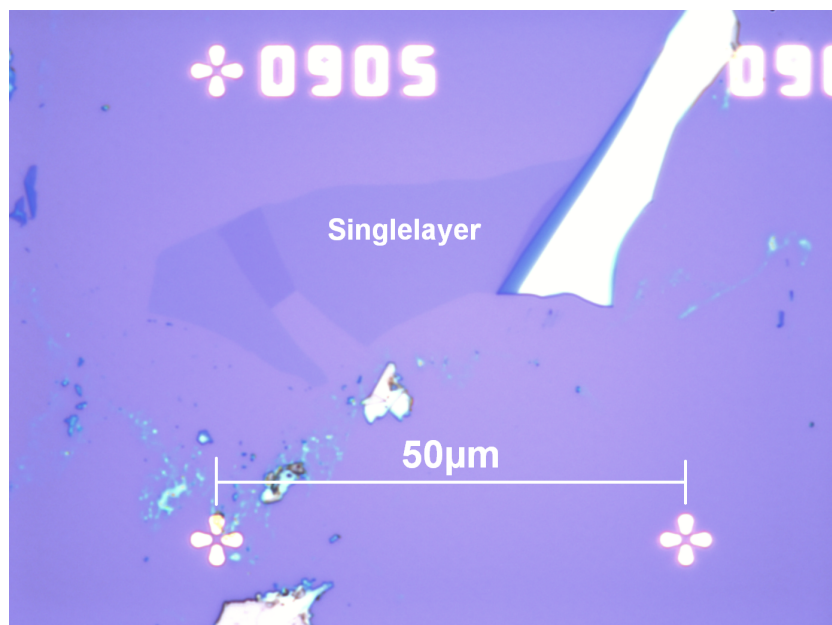
##### **3.1.1. Exfoliation von Graphen**

Für die Herstellung der im Experiment gemessenen Proben wird ein quadratischer, stark p-dotierter Siliziumchip mit einer Kantenlänge von 4,5mm verwendet. Auf der Oberfläche des blanken Siliziums befindet sich eine SiO<sub>2</sub>-Schicht, die je nach Herstellungsmethode 90nm, 285nm oder 300nm beträgt. Diese Struktur aus Si und SiO<sub>2</sub> bildet für die Experimente an Graphen das globale Backgate. Für eine einwandfreie Funktionalität des Materials bei tiefen Temperaturen konnte gezeigt werden, dass eine starke p-Dotierung des Siliziums erforderlich ist [65].

Der Siliziumchip ist mit einem optischen Lack vor mechanischen Einflüssen geschützt und wird zunächst mit Aceton in einem Ultraschallbecken gereinigt. Anschließend werden die Chips in einem Plasmaverascher mindestens fünf Minuten einem Sauerstoffplasma ausgesetzt. Dieser Ätzprozess ist vorwiegend chemischer Natur und dient in erster Linie der gründlichen Reinigung des Wafermaterials. Für die Exfoliation von Graphen verwendet man sowohl dünne Naturgraphitstücke

als auch künstlich hergestelltes HOPG (Highly Orientated Pyrolytic Graphite). Das Graphit wird auf Klebeband der Marke „Scotch Magic Tape“ gepresst, so dass sich mehrere Graphitschichten darauf befinden. Durch wiederholtes Abziehen des Graphits mit jeweils sauberen Stellen des Klebebands kann schichtweise die Lagendicke verringert werden, bis an manchen Stellen einzelne Monolagen auf dem Klebestreifen zurückbleiben. Diese mikromechanische Exfoliationsmethode macht sich die Eigenschaft zu nutze, dass die einzelnen Lagen in Graphit durch schwache van der Waals-Kräfte aneinander haften und daher leicht voneinander trennbar sind.

Das auf dem Klebeband vorbereitete Graphen wird anschließend auf den gesäuberten Siliziumchip gedrückt. Unter dem Lichtmikroskop können einzelne Graphenmonolagen und -bilagen identifiziert werden. Der durch die Lichtinterferenz hervorgerufene Kontrast ist abhängig von der Wellenlänge des Lichts und der Dicke der  $\text{SiO}_2$ -Schicht, wobei Dicken von etwa 90nm und 300nm den stärksten Kontrast liefern [66].



**Abbildung 3.1:** Lichtmikroskopaufnahme von exfoliertem Graphen auf 300nm  $\text{SiO}_2$  unter 1000-facher Vergrößerung. Die zu sehenden, kreuzförmigen Marker haben einen Abstand von 50µm. Durch den Kontrast mit dem Substrat können Graphenmonolagen identifiziert werden.

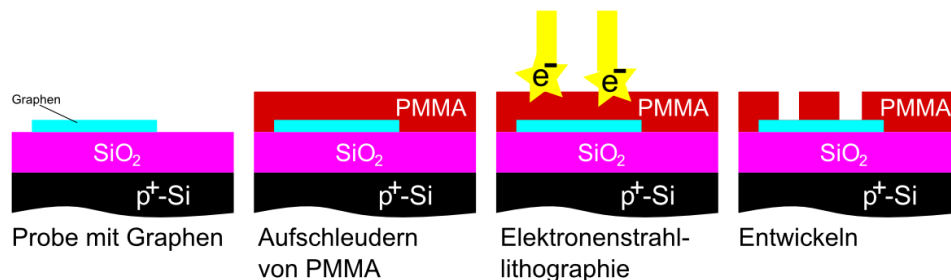
Abbildung 3.1 zeigt eine Lichtmikroskopaufnahme von unterschiedlich dicken Graphenstrukturen auf einem 300nm  $\text{SiO}_2$ -Substrat. Die vorgefertigten Marker haben einen Abstand von 50µm. Auf diesem Bild sieht man unter anderem ein umgeklapptes Stück der Graphenmonolage, dessen dunklerer Kontrast auf zwei Lagen hinweist. Rechts an der Monolage befinden sich dickere Schichten Graphit,

die später durch Ätzverfahren vom Rest der Graphenflocke abgetrennt werden müssen.

#### 3.1.2. Elektronenstrahlolithographie und Herstellung von Lackmasken

Für einen Großteil der Prozessierungsschritte bedient man sich der Elektronenstrahlolithographie. Mit ihr werden Lackmasken hergestellt, durch die gezielt Ätzprozesse und elektrisches Ankontaktieren an verschiedenen Stellen der Probe durchgeführt werden können.

Die in Kapitel 3.1.1 vorbereiteten Proben werden zunächst mit einem elektromagnetischen Lack überzogen. Als Lacke werden in erster Linie in Chlorbenzol gelöste Polymethylmethacrylate (PMMA) verwendet. Die Bindungen des langkettigen PMMA-Kunststoffs können durch Elektronenbeschuss aufgespalten werden. Nach dem Aufschleudern des PMMA und Ausheizen des Chlorbenzols werden die für die weiteren Schritte benötigten Stellen der Probe in einem Rasterelektronenmikroskop (REM) belichtet. Für die Auflösung des Elektronenstrahls ist einerseits die Beschleunigungsspannung der Kathode und somit die Wellenlänge der Elektronen entscheidend, andererseits wird sie auch durch den Proximity-Effekt bestimmt. Bei diesem Effekt werden die auftreffenden Elektronen am Lack bzw. der Substratoberfläche gestreut und an den Grenzflächen reflektiert, was eine Aufweitung des Elektronenstrahls bedeutet. Den Proximity-Effekt kann man sich bei Verwendung eines passenden Doppellacksystems für die Konstruktion von säulenartigen Topgates zu Nutze machen (vgl. Kapitel 3.2.2).



**Abbildung 3.2:** *Fabrikation einer Lackmaske mittels Elektronenstrahlolithographie. Der Chip wird mit PMMA belackt und mit Elektronen belichtet. Die belichteten Strukturen können mit MIBK entwickelt werden, so dass Teile des darunterliegenden Graphens freiliegen.*

Durch die Belichtung werden die Bindungen des PMMA gebrochen und es entstehen kurzkettinge Strukturen, welche durch geeignete Lösungsmittel entfernt werden können. Dies geschieht in der Regel mit einem Teil Methylisobutylketon (MIBK)

in drei Teilen Isopropanol. Die Entwicklungszeit ist entscheidend für die weitere Prozessierung und hängt von der Kettenlänge des PMMA und der Lackkonzentration in Chlorbenzol ab.

Abbildung 3.2 zeigt schematisch die einzelnen Schritte zur Herstellung von Masken mittels eines Positivlackes. Sie dient als Grundlage für das Herausätzen von Hallbars aus Graphen, dem Ankontaktieren der Probe selbst und der Fabrikation strukturierter Topgates.

### 3.1.3. Ätzverfahren und Kontaktierung

Im Folgenden sollen das Herausätzen von Hallbars aus Graphen und das Ankontaktieren desselbigen vorgestellt werden. Das Herausätzen einer Hallbar ist sinnvoll, weil dadurch ein paralleler Strompfad der Breite  $W$  entsteht und die einzelnen Hallabgriffe mit wohldefinierten Verhältnissen von Länge zu Breite  $L/W$  versehen werden können. Die Geometrievorgaben sind wichtig für eine quantitative Auswertung der Messergebnisse (vgl. dazu z. B. Gleichung 2.25).

Zunächst wird mit einer Lackmaske gemäß Kapitel 3.1.2 eine Hallmesastruktur hergestellt. Anschließend wird die Probe mittels Reactive-Ion-Etching (RIE) geätzt. Das trockenchemische Verfahren mit reinem Sauerstoffplasma bzw. einem Plasmagemisch aus Sauerstoff und Argon basiert sowohl auf physikalischen als auch chemischen Prozessen. Freiliegende Graphenstrukturen werden durch das Plasma weggeätzt, während die Graphenhallbar durch den Lack geschützt wird. Abschließend können der Lack und prozessbedingte Rückstände mit Aceton von der Probe gelöst werden.

Nach dem Ätzprozess findet die Kontaktierung der Probe statt. Entsprechend Kapitel 3.1.2 wird erneut eine Lackmaske hergestellt. Anschließend wird mit Elektronenstrahlverdampfung Palladium aufgedampft. Durch anschließendes Einlegen in warmes Aceton wird der restliche Lack mit dem darauf befindlichen Metall gelöst (Lift-off) und es bleibt nur an jenen Stellen Palladium zurück, die vorher bei der Lackmaske frei waren. Der Lift-off kann nur dann sinnvoll durchgeführt werden, wenn die Dicke des aufgedampften Materials deutlich dünner als der PMMA der Lackmaske ist.

Palladium hat den Vorteil, dass es bei Messungen einen weitaus geringeren Kontaktwiderstand als konventionelle Metallkontakte aus Cr/Au bzw. Ti/Au zeigt. Allerdings sei an dieser Stelle erwähnt, dass der Lift-off-Prozess von den verwendeten Aufdampfanlagen abhängig ist, die durch verschiedene Pumpsysteme unterschiedliche Basisdrücke erreichen. Während bei der einen Aufdampfanlage (UNIVEX A) der Basisdruck bei etwa  $3 \cdot 10^{-6}$  mbar liegt und der Lift-off nur mit einigen Schwierigkeiten passabel funktioniert, bessert sich das Lift-off-Verhalten bei Proben, die in der zweiten Anlage (UNIVEX B) mit einem Basisdruck von etwa  $5 \cdot 10^{-7}$  mbar bedampft wurden, enorm.

## 3.2. Besonderheiten in der Topgatefertigung

Mit den bisher vorgestellten Methoden können Graphenhalbleiter geätzt und für Messungen auf einem  $\text{SiO}_2$ -Backgate ankontaktiert werden. Eine lokale Modulation der Ladungsträger soll mittels eines Topgates geschehen. In den folgenden Kapiteln wird nun auf die Besonderheiten für die Herstellung des Gatedielektrikums eingegangen sowie zwei verschiedene Modulationsarten vorgestellt.

### 3.2.1. Herstellung des Topgatedielektrikums $\text{Al}_2\text{O}_3$ mittels Atomic Layer Deposition (ALD)

Ein wesentlicher Bestandteil dieser Arbeit beinhaltet die Aufgabenstellung, Dielektrika auf Graphen aufzutragen ohne dabei die elektronischen Eigenschaften des Graphens wesentlich zu beeinflussen. Insbesondere soll die Einbettung des Graphens die Beweglichkeit und die damit verbundene, mittlere freie Weglänge nicht beeinflussen. Im Folgenden soll nun auf die Atomic Layer Deposition (ALD) von  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , auf die Probleme der Atomlagenabscheidung speziell auf Graphen und die Lösungsmöglichkeiten dazu eingegangen werden.

ALD bietet die Möglichkeit, sehr dünne und gegen elektrischen Durchbruch stabile Isolatorschichten zu wachsen. Wie bei der Chemical Vapor Deposition (CVD) werden ein oder mehrere reaktive Gase in eine Kammer gebracht, um auf einem Substrat das Dielektrikum zu wachsen. Bei der ALD werden zwei Gase immer alternierend in die Reaktionskammer gepumpt. Die sich selbst limitierenden Reaktionen, die zum Oxidwachstum beitragen, finden jeweils nur an der Oberfläche der Probe statt und die überflüssigen Reaktanten sowie die Produkte der Reaktion werden aus der Kammer transportiert. Dieses Verfahren erlaubt die annähernd atomlagengenaue Abscheidung [67].

Im Rahmen dieser Arbeit wurde der Fokus auf die Herstellung von  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Dielektrika aus den Präkursoren Trimethylaluminium (TMA) und Wasser gelegt. Die für die Abscheidung charakteristischen, sich wiederholenden Abläufe sind [67] [68]:

- Adsorption von Wasser auf der Oberfläche (Initialschritt) bzw. Reaktion mit freien TMA-Radikalen an der Oberfläche
- Abpumpen bzw. Spülen der Kammer mit Stickstoff zum Entfernen des Reaktionsprodukts Methan und der restlichen Wassermoleküle
- Adsorption von TMA zur Reaktion mit freien  $\text{OH}^-$ -Gruppen an der Oberfläche
- Abpumpen bzw. Spülen der Kammer mit Stickstoff zum Entfernen des Reaktionsprodukts Methan und der restlichen TMA-Moleküle

Der Initialschritt, also die erstmalige Adsorption von Wasser, stellt sich insofern problematisch dar, da Graphen eine hydrophobe und chemisch inaktive Oberfläche

besitzt [69]. Für die Herstellung des Topgatedielektrikums wurden im Rahmen dieser Arbeit drei Lösungsansätze näher systematisch beleuchtet, nämlich die direkte Atomlagenabscheidung bei geringer Prozesstemperatur, in-situ-annealing ALD und das Wachsen von Seedlayern mittels aufgedampftem und oxidiertem Aluminium.

### **Direkte ALD-Prozesse**

Während das Wachstum von  $\text{Al}_2\text{O}_3$  auf reinen Graphenproben nicht funktionieren würde, bieten reale Graphenproben Nukleationszentren, an denen die isotrope Atomlagenabscheidung beginnen kann. Diese Zentren sind in erster Linie die Graphenränder, Gitterfehlstellen und Verunreinigungen, wie etwa durch PMMA-Reste aus vorhergehenden Prozessierungsschritten. In enger Zusammenarbeit mit Dominik Koch im Rahmen seiner Diplomarbeit über high- $\kappa$  Dielektrika auf Graphen [70] konnte eine systematische Abhängigkeit der Atomlagenabscheidung von  $\text{Al}_2\text{O}_3$  auf Graphen von der ALD-Prozesstemperatur sowie der  $\text{N}_2$ -Spülzeit zwischen den Reaktionen festgestellt werden.

Für die folgenden Untersuchungen wurden 30nm dicke Schichten von  $\text{Al}_2\text{O}_3$  auf Graphenstrukturen gewachsen und mit einem Topgate versehen. Prinzipiell ist der ALD-Prozess zwischen 85°C und 400°C möglich. Transportuntersuchungen an diesen Graphen-FETS zeigen, dass die elektrische Stabilität des Gates ab einer Prozesstemperatur von 140°C nicht mehr gewährleistet ist. Optische Untersuchungen im Rasterelektronenmikroskop bestätigen dies, da man strukturelle Löcher im  $\text{Al}_2\text{O}_3$  sehen kann. Der optimale Temperaturbereich für ein stabiles Gatewachstum liegt im Bereich zwischen 100°C und 120°C.

Neben der Temperatur spielt die Spülzeit eine große Rolle. Sie muss für ein atomlagengenaues Wachstum an die Prozesstemperatur angepasst werden. Es kann auch eine geringere Spülzeit als vorgesehen verwendet werden. Jedoch ist hierbei zu beachten, dass es zu einem unkontrollierten, CVD-artigeren Wachstum kommen kann. In den Messungen mit zu geringer Spülzeit zeigen sich dadurch Hysteresen, wenn man die Gatespannung variiert. Die optimale Spülzeit bei einer Prozesstemperatur von 120°C zwischen dem Einbringen der Präkursoren konnte zwischen 35 und 40 Sekunden ausgemacht werden, wobei längere Spülzeiten tendenziell zu einer p-Dotierung und kürzere Spülzeiten zu einer n-Dotierung der Graphenprobe führen.

### **In-situ-annealing ALD-Prozesse**

Um den ALD-Prozess auf Graphen gewissermaßen zu erzwingen, kann man sich des in-situ-annealings bedienen. Dabei wird bei geringen Temperaturen von 100°C und kurzen Spülzeiten von fünf Sekunden CVD-artig eine amorphe Schicht  $\text{Al}_2\text{O}_3$



gewachsen, die zwar frei von strukturellen Löchern ist, jedoch aufgrund unabgesättigter Bindungen innerhalb des Oxids eine hohe Dotierung im Graphen verursachen würde. Um dem entgegenzuwirken, wird anschließend die Temperatur der Probenkammer auf ca. 225°C bis 250°C erhöht und die gewünschte Dicke prozessiert. Die darunterliegenden Schichten werden dabei noch während der Abscheidung annealed und können ein stabiles Oxid formen. Zur Komplettierung des Prozesses hat es sich als notwendig erwiesen, die Proben mindestens weitere zwei Stunden in der hochgeheizten Kammer zu belassen.

#### **Seedlayerwachstum**

Da es bei direkten ALD-Prozessen auf Graphen stets dazu kommt, dass unabgesättigte Bindungen („dangling bonds“) die elektronischen Eigenschaften des Graphens verschlechtern und das lückenfreie Wachstum aufgrund der chemischen Trägheit des Graphens nicht zwangsweise gegeben ist, bietet das Aufwachsen eines Seedlayers einen weiteren Lösungsweg zur Verbesserung des Topgatedielektrikums. Hier wurden drei mögliche Varianten des Seedlayerwachstums näher untersucht. Um Graphen zu funktionalisieren, kann man es mit einer Lösung aus Perylentetracarboxylsäure (PTCA) behandeln. Das planare Molekül mit seiner benzolähnlichen Ringstruktur kann sich auf Graphen durch Überlappung der eigenen  $\pi$ -Orbitale mit denen des Graphens anlagern, während die Säurereste bestehend aus Hydroxyl- und Sauerstoffgruppen als Startzentren für das ALD-Wachstum fungieren (vgl. dazu [71]). Eigene Untersuchungen zeigen, dass sich die Herstellung einer PTCA-Lösung, welche im Optimalfall exakt eine Monolage auf Graphen bilden soll, als schwierig herausstellt. Es ist zwar anschließend ein lückenloses Wachstum von  $\text{Al}_2\text{O}_3$  mittels ALD auf diesen vorbehandelten Strukturen möglich, jedoch zeigen Transportexperimente deutliche Gatehysteresen. Dies liegt darin begründet, dass das eingebettete Molekül eine geladene Störstelle darstellt.

Weitere Untersuchungen wurden mit sogenannten Noncovalent Functionalization Layern (NCFL) gemacht. Dabei werden bei der Atomlagenabscheidung alternierend Stickstoffdioxid und TMA gepulst. Dieses Verfahren wurde an Kohlenstoffnanoröhren angewandt [72] und auch auf Graphenstrukturen verifiziert [47].  $\text{NO}_2$  und TMA bilden in einer Reaktion eine Schicht  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , die nicht kovalent an Graphen gebunden ist und somit die elektrischen Eigenschaften des Materials unberührt lässt. Eigene Untersuchungen zeigen, dass dieses Verfahren für experimentelle Transportuntersuchungen nicht praktikabel ist. Zum Einen machen es die physikalischen Eigenschaften von  $\text{NO}_2$ , insbesondere der Siedepunkt bei Zimmertemperatur, schwierig, das Gas kontrolliert in die ALD-Kammer zu pumpen. Zum Anderen wurden Transportmessungen an Graphenstrukturen mit flächendeckenden Topgates gemacht, welche mit einem NCFL gewachsen wurde. Es stellt sich dabei keine signifikante Verbesserung der Beweglichkeit gegenüber anderen Proben heraus, deren Topgates mit einem Niedrigtemperatur-ALD-Prozess gewachsen wurden.

Die letzte hier vorgestellte Möglichkeit bildet das direkte Aufdampfen von dünnen Schichten Aluminium auf die Graphenproben, welche nachher oxidiert werden. Spektroskopische Untersuchungen und elektrische Messungen haben ergeben, dass eine 1-2nm dicke Aluminiumschicht komplett durchoxidiert, sobald sie dem Luft-sauerstoff ausgesetzt wird [73]. Für das Aufdampfen eines Seedlayers wurde hier eine UHV-Kammer mit einem Basisdruck im Bereich von  $10^{-9}$ mbar verwendet. Um eine Clusterbildung des Oxids zu vermeiden, wurde der Aufdampfprozess mit flüssigstickstoffgekühltem Probenhalter bei Temperaturen bis zu  $-120^{\circ}\text{C}$  durchgeführt. Um eine komplette Oxidation zu erreichen, wurden die Proben mindestens eine Stunde in reiner Sauerstoffatmosphäre belassen. Anschließend konnte mittels Atomlagenabscheidung die gewünschte Dicke des Topgatedielektrikums hergestellt werden.

### Identifikation von Nukleationszentren und Prozessoptimierung für die Atomlagenabscheidung

Die in dieser Arbeit prozessierten Proben weisen in der Regel eine relativ niedrige Beweglichkeit von unter  $\mu = 4500 \frac{\text{cm}^2}{\text{Vs}}$  auf (vgl. Kapitel 5), während die Graphenproben mit NCFL bzw. Seedlayer gewachsenen Proben anderer Arbeitsgruppen Werte von über  $\mu = 8000 \frac{\text{cm}^2}{\text{Vs}}$  erreichen [47] [73]. Die Vermutung liegt nahe, dass zwischen den einzelnen Fabrikationsschritten unerwünschte Rückstände auf der Graphenoberfläche zurückbleiben, welche beim Wachsen des Dielektrikums unter der Oxidschicht eingebettet werden und unmittelbar die Beweglichkeit des Graphens reduzieren. Da die Kontaktierung der Graphenstruktur mindestens zwei Elektronenstrahlolithographieschritte beinhaltet, bei denen PMMA aufgeschleudert und ausgebacken wird, ist die Wahrscheinlichkeit groß, dass der Lack mit Aceton als Lösungsmittel nicht rückstandsfrei entfernt wird.

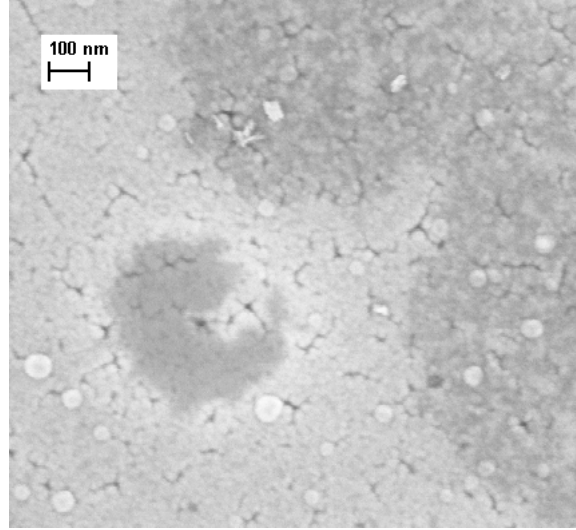
Um diese These im Experiment zu überprüfen, wurden Graphenproben gemäß Kapitel 3.1 hergestellt. Anschließend wurde die fertig kontaktierte Probe für mehrere Minuten in Chloroform gelegt. Cheng *et al.* konnten in einer systematischen Analyse zeigen, dass die Standardlösungsmittel wie Aceton nicht sämtliche Lackreste lösen. AFM- und Transportuntersuchungen an mit Chloroform behandelten Graphenpräparaten legen den Schluss nahe, dass sich PMMA in Chloroform besser löst und weniger Rückstände auf der Graphenoberfläche zurückbleiben [74].

Auf die mit Chloroform gereinigte Probe wurde zunächst eine dünne Schicht Aluminium von etwa 0,8nm in einer UHV-Aufdampfanlage aufgedampft, das Aluminium durchoxidiert und dann mittels ALD  $\text{Al}_2\text{O}_3$  der Dicke 25nm aufgetragen. Dabei wurde als Prozesstemperatur  $250^{\circ}\text{C}$  gewählt, also ein ALD-Prozess, bei dem das Dielektrikum an reinen Graphenflocken nur an Gitterdefekten bzw. Rändern wachsen würde.

Abbildung 3.3 zeigt die Oberfläche einer mit den beschriebenen Prozessierungsschritten hergestellten Graphenprobe im Rasterelektronenmikroskop. Das Aluminiumoxid erscheint weiß und wächst bei  $250^{\circ}\text{C}$  in erster Linie bei Gitterdefekten

des Graphens. Da der Prozess nicht für das flächendeckende Wachstum geeignet ist, erscheinen im Oxid Löcher, welche im REM-Bild schwarz sind. Anschließend wurden Transportuntersuchungen im Kryostaten bei  $T=1,7K$  durchgeführt, um die Beweglichkeit zu bestimmen (zum Messaufbau selbst siehe Kapitel 3.3).

**Abbildung 3.3:** Mit Chloroform gereinigtes Graphen bedeckt mit 25nm  $Al_2O_3$ . Das Wachstum des Oxids wurde bei Temperaturen von 250° C durchgeführt und startet bei dieser Temperatur nur an Gitterdefekten. Das Oxid zeigt wie erwartet mehrere strukturelle Löcher (schwarze Stellen).

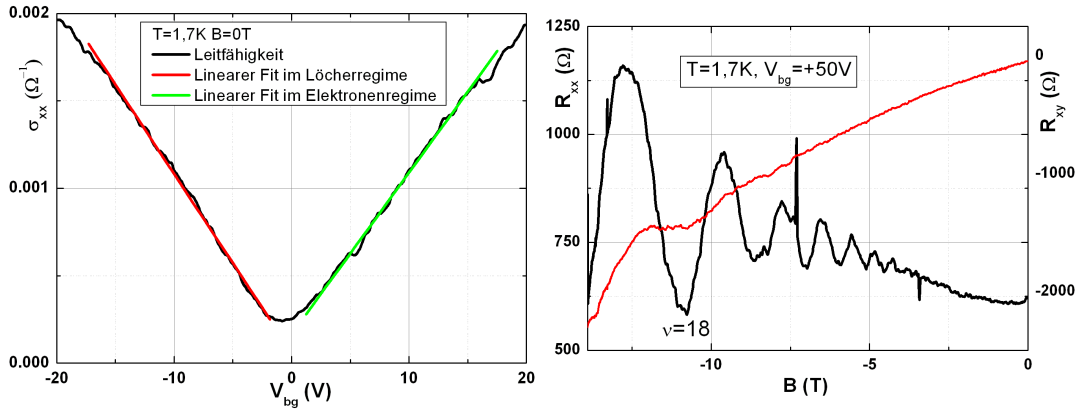


Die annähernd  $10\mu m \times 1,5\mu m$  große, rechteckige Probe wurde mit insgesamt sechs Kontakten, von denen zwei den Source- und Drainkontakt für den Strompfad bilden und jeweils zwei Abgriffpaare für Hall- und Längsspannung versehen. Da aus dieser Probe keine wohldefinierte Hallstruktur aus der Graphenmonolage geätzt werden konnte, wurde zunächst mittels der van der Pauw-Methode (vgl. dazu [75]) der Schichtwiderstand bei Backgate  $V_{bg} = 0V$  zu  $\rho_{\square} = 3960\Omega$  ermittelt. Anschließend wurde der Strom an Source und Drain angelegt und der Längswiderstand in Vierpunktgeometrie bei Backgate  $V_{bg} = 0V$  mit einem Wert von  $R_{4pt} = 8700\Omega$  gemessen. Der Quotient der beiden Werte liefert den Geometriefaktor der Struktur  $L/W = R_{4pt}/\rho_{\square} = 2,2$ , welcher hier für die Bestimmung der Beweglichkeit erforderlich ist.

Die Leitfähigkeit wird auf zwei verschiedene Arten bestimmt. Eine Analyse der Steigungen im Leitfähigkeitsgraph abhängig von der Backgatespannung (siehe linker Graph in Abbildung 3.4) liefert bei Berechnung mit dem Plattenkondensatormodell (vgl. Gleichung 2.9) eine Löcherleitfähigkeit von  $\mu = 8420cm^2/Vs$  und eine Elektronenleitfähigkeit von  $\mu = 7630cm^2/Vs$  für ein 285nm dickes  $SiO_2$  Backgate mit  $\epsilon_r = 3,9$  (siehe Abbildung 3.4).

Zum Vergleich dazu wird die Beweglichkeit aus der Steigung der klassischen Hallgeraden für Backgatespannungen von  $V_{bg} = 30V$  und  $V_{bg} = 50V$  ermittelt (vgl. Gleichungen 2.25). Zunächst wird der Abstand  $\Delta\frac{1}{B}$  der Shubnikov-de Haas-Minima bestimmt und dann gemäß der Vierfachtartung des Graphen die Ladungsträgerdichte  $n = \frac{4e}{h}(\Delta\frac{1}{B})^{-1}$  berechnet. Sie liegt für  $V_{bg} = 30V$  bei  $n_{30V} = 2,2 \cdot 10^{16}m^{-2}$  und für  $V_{bg} = 50V$  bei  $n_{50V} = 3,8 \cdot 10^{16}m^{-2}$ . Daraus ergeben sich für die Steigung

der Hallgeraden  $dR/dB = (en)^{-1}$  Werte von  $dR/dB = 283\Omega/T$  (für  $V_{bg} = 30V$ ) und  $dR/dB = 164\Omega/T$  (für  $V_{bg} = 50V$ ). Mit den gemessenen Längswiderständen von  $843\Omega$  (für  $V_{bg} = 30V$ ) und  $610\Omega$  (für  $V_{bg} = 50V$ ) errechnet sich die Beweglichkeit unter Einbezug des vorher ermittelten Geometriefaktors  $L/W = 2,2$  zu  $\mu_{30V} = 7390cm^2/Vs$  und  $\mu_{50V} = 5910cm^2/Vs$ . Diese Beweglichkeiten liegen nun durchaus im Bereich anderer Arbeitsgruppen, die Strukturen mit Topgates auf Graphen untersuchen.



**Abbildung 3.4:** Bestimmung der Leitfähigkeit von mit Chloroform behandelten Proben. Links ist die Leitfähigkeit abhängig vom Backgate aufgetragen, der Diracpunkt liegt sehr nahe bei  $V_{bg} = 0V$ . Auch die deutlich ausgeprägten Shubnikov-de Haas-Oszillationen (rechter Graph) deuten auf eine hohe Beweglichkeit hin.

Durch diese sorgfältige Analyse der Beweglichkeit mit Chloroform gereinigten Proben konnte gezeigt werden, dass vorwiegend die PMMA-Reste aus den Prozessierungsschritten, bevor das Topgatedielektrikum gewachsen wird, die Graphenstruktur kontaminieren und damit die Beweglichkeit reduzieren. Daraus ergibt sich die Frage, welche der vorgestellten ALD-Prozessierungsarten für ein qualitativ hochwertiges Topgate am Besten erscheint.

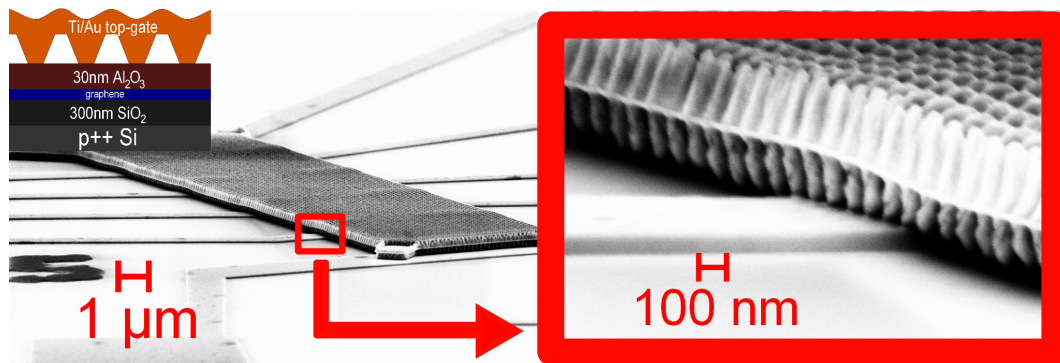
Wie man in Abbildung 3.3 erkennt, führt diese Prozessierung nicht zu einem flächendeckenden Wachstum. Das liegt insbesondere an dem Umstand, dass Chloroform zwar die Graphenoberfläche reinigt, aber paradoxerweise dem hydrophoben Graphen Nukleationszentren für den Start des ALD-Wachstum-Prozesses nimmt. Dies konnte speziell im Falle der oben beschriebenen Probe auch durch einen 0,8nm dicken Seedlayer nicht wieder kompensiert werden.

Da das Ziel ein flächendeckendes Topgate auf einer sauberen Graphenstruktur darstellt, kann man zusammenfassend folgende Vorgehensweise als die Beste erachten. Die Proben müssen vor dem Wachstum des Dielektrikums mit Chloroform behandelt werden, um beweglichkeitsreduzierende PMMA-Reste lückenlos zu entfernen. Eigene Versuche, auf diesen Proben sowohl direkte als auch in-situ-annealing-ALD-Prozesse durchzuführen, blieben weitestgehend erfolglos. Daher muss nach dem Chloroformreinigungsschritt ein genügend dicker Aluminium-Seedlayer von

ca. 1-2nm gewachsen werden. Auf dem Seedlayer kann dann mit Atomlagenabscheidung fortgefahren werden.

### 3.2.2. Fabrikation von strukturierten Topgates

Nachdem das Dielektrikum auf die kontaktierte Graphenhalbleiter aufgetragen wurde, muss nun das Topgate strukturiert werden. Im Folgenden werden dabei zwei unterschiedliche Vorgehensweisen betrachtet, die auf dem Aufdampfen von Metall auf das Dielektrikum beruhen. Das Metall kann entweder in Form einer Säulenhalle oder als Liniengitter aufgetragen werden. Ersteres bewirkt beim Anlegen einer Spannung ein Modulationsarray in zwei Dimensionen, letzteres moduliert die Probe eindimensional ähnlich der in Gleichung 2.20 vorgestellten Theorie.



**Abbildung 3.5:** REM-Aufnahmen einer Graphenprobe mit säulenartigem Topgate. Die Topgatesäulen sind in einem zweidimensionalen Array mit einem Abstand von 150nm angeordnet und sind in einer Höhe von etwa 150nm leitfähig verbunden.

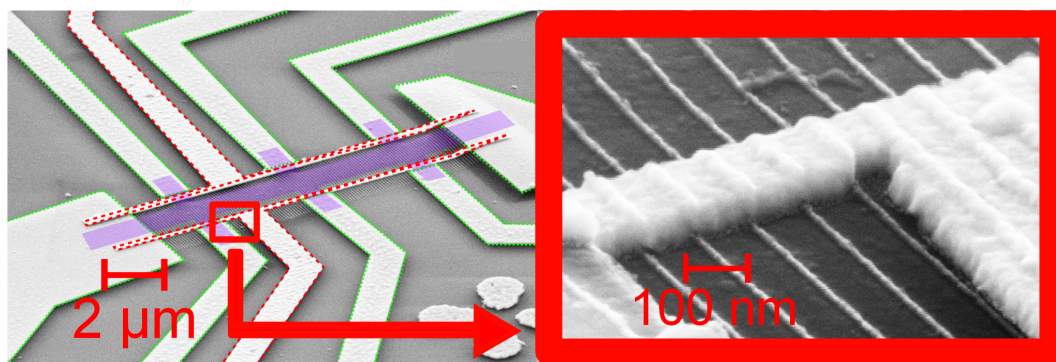
Abbildung 3.5 zeigt ein säulenartiges Topgate mit einer Gitterperiode von 150nm. Die Herstellung erfolgt mit Hilfe der Elektronenstrahlolithographie.

Hierzu verwendet man ein Doppellacksystem und nutzt den Proximity-Effekt. Die untere Schicht besteht aus 4% in Chlorbenzol gelöstem PMMA 950k und die obere Schicht aus einem Copolymer PMMA/MA in 8%iger Lösung, welche nacheinander aufgeschleudert und ausgebacken werden.

Die obere Lackschicht muss dabei sensitiver auf Elektronenbeschuss sein als der untere. Dadurch kann man bei geeigneter Wahl der Dosis erreichen, dass bei einer Punktbelichtung des Arrays Löcher in den unteren Lack belichtet werden. Für den oberen Lack stellt diese gewählte Dosis eine Überbelichtung dar. Durch den Proximity-Effekt an der Lackgrenze weitet sich der Elektronenstrahl derart auf, dass im Bereich des Arrays der obere Lack komplett durch belichtet ist. Dadurch kann beim Aufdampfen von Metall, wobei in dieser Arbeit in der Regel Chrom

und Gold verwendet wurden, eine säulenartige Struktur entstehen, dessen Spitzen mit einem Metalldach verbunden sind.

Die Abmessungen des Arrays ergeben sich aus dem Spin-On-Verhalten der einzelnen Lacke und der Dosis der Punktbelichtung des Arrays. Dosistests ergaben, dass die Herstellung eines Arrays bis zu einer Gitterkonstante von 150nm machbar ist. Die Lackdicken selbst wurden mit einem Weißlichtinterferometer bestimmt. Die untere Lackschicht ist 220nm hoch. Aufgrund der Vermischung der Lacke beim Aufschleudern und des Proximity-Effekts reduziert sich jedoch die Säulenhöhe auf etwa 150nm, während der Durchmesser der Säulen bis zu 100nm betragen kann.

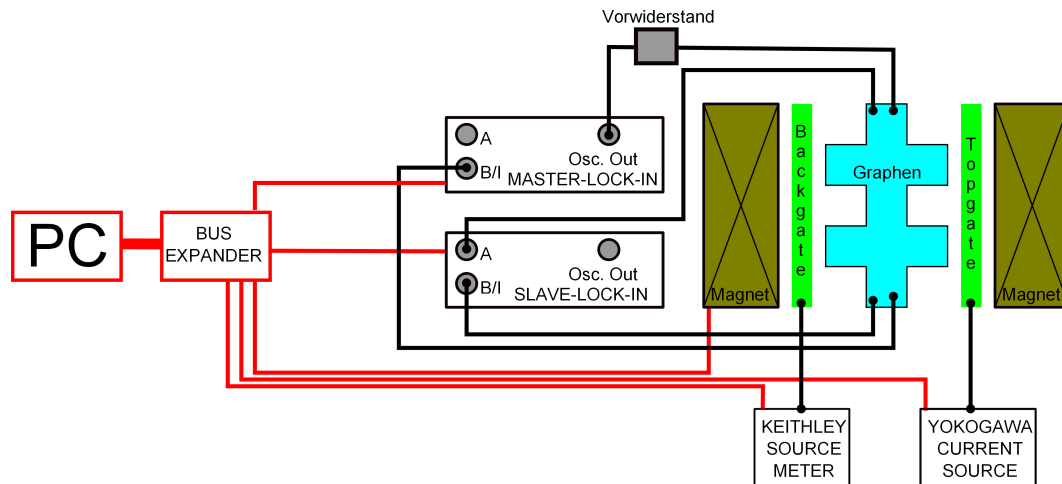


**Abbildung 3.6:** REM-Aufnahmen einer Graphenprobe mit einem Topgate aus mehreren Linien. Die geätzte Graphenhalbleiter (violett) wurde mit Palladium ankontaktiert (grün). Nach dem Aufwachsen des Dielektrikums wurde das Liniengitter mit  $Au_{60}Pd_{40}$  bedampft und die einzelnen Linien in einem weiteren Lithographieschritt miteinander verbunden (rot).

Abbildung 3.6 zeigt ein linienartiges Topgate mit einer Gitterkonstante von 100nm. Für die Herstellung greift man auch hier auf die Elektronenstrahlolithographie zurück. Durch die Verwendung von 3,5% in Chlorbenzol gelöstem PMMA 200k-Lack, einer Elektronenliniendosis von bis zu  $2000pC/cm$  und der Optimierung der Entwicklungszeit sowie durch das Aufdampfen der Topgatestreifen mit einer Gold-Palladium Legierung sind Gitterperioden von 60nm erreichbar, wobei die einzelnen Linien durch den Proximity-Effekt eine Breite von etwa 20nm aufweisen.

Das linienartige Topgate benötigt für die metallische Verbindung der einzelnen Streifen noch einen weiteren Lithographieschritt. Die erreichbaren Gitterperioden sind jedoch um einiges geringer als beim säulenartigen Topgate. Auch muss bei der säulenartigen Modulation berücksichtigt werden, dass das Säulendach im Abstand von etwa 150nm eine globale Änderung der Ladungsträgerdichte in Graphen bewirkt. Im Experiment bieten daher die linienartigen Topgates eine effizientere Möglichkeit, die Modulationsstärke einer Probe einzustellen.

### 3.3. Der Messaufbau



**Abbildung 3.7:** Schematischer Messaufbau mit zwei Lock-In-Verstärkern. Backgatespannung, Topgatespannung, Magnetfeldstärke, Stromstärke des Master-Lock-Ins und die gemessenen Spannungen der Slave-Lock-Ins werden via GPIB an einen Mess-PC übermittelt und aufgenommen.

Die Messungen werden in einem Verdampferkryostaten durchgeführt. Dieser besteht aus einem äußeren, flüssigen Heliumbad und einer inneren Kammer, dem Variable Temperature Insert (VTI). Das VTI, in dem sich die Probe beim Messen befindet, kann mit einer Drehschieberpumpe evakuiert werden. Heliumbad und VTI sind mit einem Nadelventil verbunden. Durch Öffnen des Nadelventils läuft flüssiges Helium in das evakuierte VTI, wo es verdampft. Dadurch können Temperaturen von bis zu 1,4K erreicht werden. Zusätzlich befinden sich im Heliumbad supraleitende Spulen, mit denen man senkrecht zur Probenoberfläche je nach verwendetem Kryostaten ein Magnetfeld von bis zu 10T beziehungsweise 14T anlegen kann.

Für die Messungen verwendet man Lock-In-Verstärker (EG&G 7260 DSP Lock-In Amplifier). Am Oszillatorausgang des Master-Lock-In-Verstärkers wird eine Spannung von 10mV und eine Messfrequenz von 13Hz eingestellt. Source- und Drainkontakte der Graphenprobe werden über einen Vorwiderstand von einem Megaohm mit dem Master-Lock-In verbunden. Da der Vorwiderstand um etwa zwei Größenordnungen größer ist als der Widerstand einer typischen, exfolierten Graphenflocke, beträgt der Messstrom knapp 10nA.

Es können bis zu drei weitere Lock-In-Verstärker verwendet werden, um Längs- und Hallspannungen an den Graphenproben zu messen. Diese sind über einen Optokoppler mit dem Master-Lock-In-Verstärker verbunden. Die Spannungen am Back- und Topgate werden mit Sourcemetern eingestellt (Backgate: Keithley 2400 Sourcemeter, Topgate: Yokogawa 7651 DC Source). Sämtliche Messgeräte sowie die Steuerung des Magnetfeldes sind mit GPIB-Kabeln verbunden. Die aus-

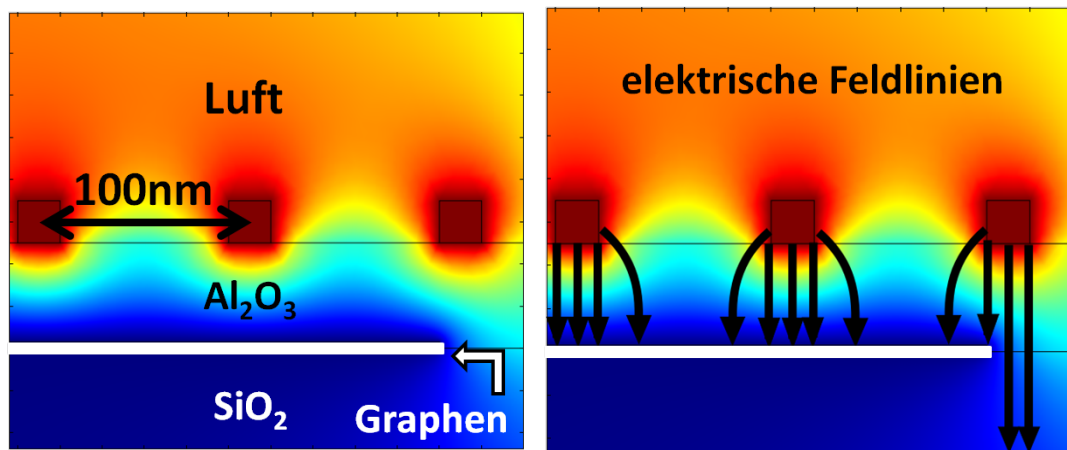
gelesenen Messwerte werden über einen Bus Expander an ein Messprogramm übermittelt und können anschließend ausgewertet werden (siehe Abbildung 3.7).



## 4. Modellierung von strukturierten Topgates mit finiten Elementen

In diesem Kapitel soll erklärt werden, welche Simulationen zur Bestimmung des elektrischen Feldverlaufs eines Übergitters durchgeführt wurden. Durch Finite Element Modelling (FEM) mit Hilfe des Programms COMSOL Multiphysics® kann die induzierte Ladungsträgerdichte eines strukturierten Topgates einer wie in Kapitel 3 hergestellten Graphenprobe simuliert und analysiert werden. Die räumliche Verteilung der Effizienz sowie die Form der Ladungsträgerdichte stellen sich abhängig der Probenparameter als sehr entscheidend für die Transportmessungen in Graphenübergitterstrukturen dar. Im Folgenden wird nun die Simulation eines linienartigen Topgates näher erläutert.

### 4.1. Das FE Modell und die variablen Parameter



**Abbildung 4.1:** Ausschnitt des Querschnitts des Simulationsmodells mit einer Topgatespannung von zehn Volt. Der Farbverlauf von rot nach blau spiegelt die Stärke des elektrischen Feldes wider und hat einen geschwungenen Verlauf bei der Graphenoberfläche. Dies impliziert, dass das Topgate nicht nur auf den gegateten Bereich sondern auf die gesamte Graphenfläche eine Wirkung hat.

Um die Anzahl der induzierten Ladungsträger und die Form der Modulation eines linienförmigen Topgates zu bestimmen, wurde ein Querschnitt der in Kapitel 3

beschriebenen Proben gezeichnet und mit den jeweiligen elektrischen Parametern versehen. Man startet mit einem einstellbaren, 300nm dicken  $\text{SiO}_2$ -Backgate mit Permittivität  $\epsilon_r = 3,9$ . Darauf befindet sich eine Graphenflocke mit 0,3nm Dicke. Als nächster Schicht folgt das Dielektrikum, dessen Dicke und Permittivität verändert werden können. Die Topgatestreifen weisen gemäß der experimentellen Möglichkeiten eine Breite und Höhe von jeweils 20nm auf. Die Periodizität des Topgates ist dabei frei einstellbar. Um den Verlauf der Feldlinien realistischer zu simulieren, befindet sich über den Topgatestreifen eine Schicht aus Luft mit Permittivität  $\epsilon_r = 1$ .

Das linke Bild in Abbildung 4.1 zeigt einen Ausschnitt des verwendeten Modells. In dieser Konfiguration wurde eine Permittivität eines  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Topgates von  $\epsilon_r = 7,5$  angenommen und die Dicke des Dielektrikums beträgt 37nm. An den drei im Bild sichtbaren Topgatestreifen, welche eine Periodizität von 100nm aufweisen, wurde eine Spannung von  $V = 10\text{V}$  angelegt. Die Graphenlage wurde auf Erdpotential gebracht und am Backgate wurde keine Spannung angelegt.

Der Farbverlauf in Abbildung 4.1 zeigt den Verlauf der elektrischen Feldstärke und damit auch die dielektrische Verschiebung  $\vec{D}$ , die im Plattenkondensatormodell mit Ladung  $q$  und Fläche  $A$  via  $\vec{D} = q/A$  direkt mit der induzierten Ladungsträgerdichte verknüpft ist. Schon anhand des Farbverlaufs dieser Modellbetrachtung ist ersichtlich, dass die Modulation, welche durch ein linienartiges Topgate verursacht wird, nicht als Rechteckpotential angenommen werden kann. Insbesondere verlaufen die elektrischen Feldlinien von den Topgatestreifen aus in alle Bereiche der darunter liegenden Graphenstruktur und induzieren somit auch global Ladungsträger.

## 4.2. Ergebnisse der Simulationen

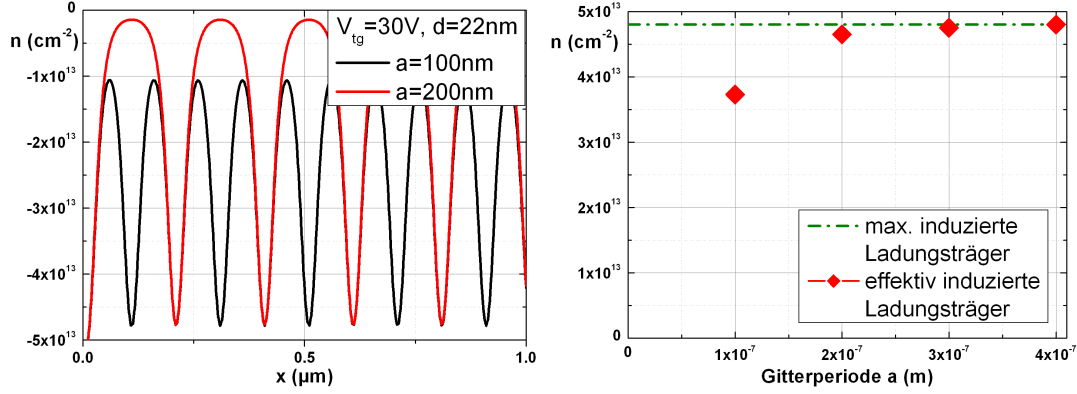
Eine erste, qualitative Begutachtung der Simulationsergebnisse aus Kapitel 4.1 legt den Schluss nahe, dass bei Anlegen einer Spannung an ein linienartiges Topgate auch Ladungsträger in der gesamten Graphenprobe induziert werden und das mit dem Topgate eingestellte Potential weiche Kanten aufweist. Dieses Verhalten soll nun quantitativ näher beleuchtet werden. Dazu simuliert man die dielektrische Verschiebung im Graphen abhängig von der Permittivität  $\epsilon_r$  des Topgatedielektrikums, der eingestellten Backgatespannung  $V_{bg}$ , der Gitterperiode  $a$ , der Topgatespannung  $V_{tg}$  und der Dicke des Topgatedielektrikums  $d$ .

Eine Analyse der Abhängigkeit der induzierten Ladungsträgerdichten von der Permittivität  $\epsilon_r$  des Topgatedielektrikums bringt zu Tage, dass sich diese erhöhen, je höher  $\epsilon_r$  gewählt wird. Da im Experiment nur  $\text{Al}_2\text{O}_3$  als Topgatedielektrikum verwendet wurde, soll im Folgenden auf eine genauere Auswertung der Permittivität verzichtet werden. Für die folgenden Simulationen ist  $\epsilon_r = 7,5$ .

Eine Variation des Backgates liefert erwartungsgemäß eine Änderung der gesamten Ladungsträgerdichte, spielt aber für Art und Form der elektrischen Modulation

keine wesentliche Rolle. Daher wird die Backgatespannung für die folgenden Simulationen ignoriert und  $V_{bg} = 0V$  gesetzt.

Entscheidend für die Glättung des Potentials sind vor allem die Periodizität  $a$ , die angelegte Topgatespannung  $V_{tg}$  und die Dicke  $d$  des Dielektrikums. Der Einfluss dieser drei Parameter soll in diesem Abschnitt näher erklärt werden.

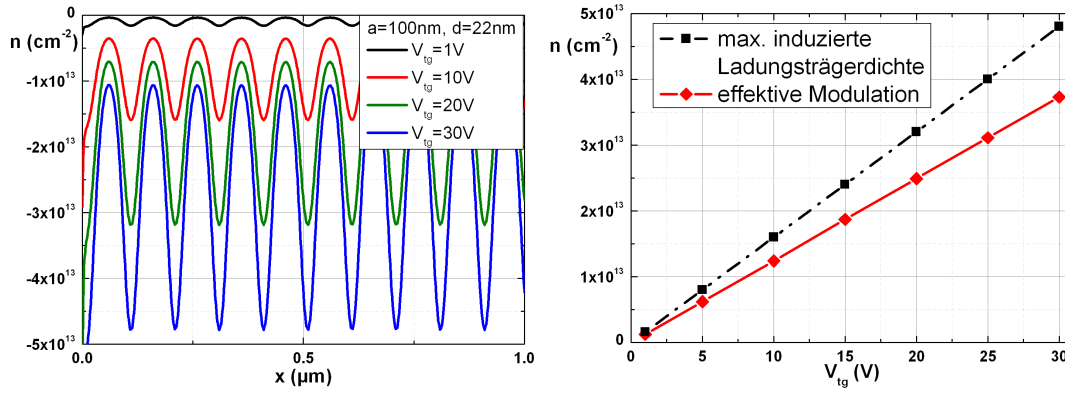


**Abbildung 4.2:** Simulation der induzierten Ladungsträger eines lateral strukturierten Topgates in Abhängigkeit der Gitterperiode. Während die maximal induzierte Ladungsträgerdichte stets gleich bleibt, führen kürzere Gitterperioden zur Abnahme der effektiven Modulation.

Der linke Graph in Abbildung 4.2 zeigt die Abhängigkeit der induzierten Elektronen von der Lage der Topgatestreifen für zwei verschiedene Gitterperioden. Für die Dicke des Topgatedielektrikums wurde  $d = 22\text{nm}$  gewählt und an den Topgatestreifen eine positive Spannung von  $V_{tg} = +30V$  eingestellt. Unabhängig davon, ob für die Gitterperiode  $a = 100\text{nm}$  oder  $a = 200\text{nm}$  gewählt wurde, beträgt das Maximum der induzierten Ladungsträger unter den Topgatestreifen  $n = -4,8 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ . Je kürzer die Periode des Gitters gewählt wird, umso bedeutender werden, auch aufgrund der endlichen Breite der einzelnen Streifen, Streufeldeffekte. Bei einer Periode von  $a = 100\text{nm}$  werden auch im nicht-topgegateten Bereich etwa  $n = -1,1 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$  Elektronen induziert, was einer 23%-igen Reduktion der eigentlich erwarteten Modulationsstärke entspricht.

Der rechte Graph in Abbildung 4.2 zeigt die Modulationseffektivität für verschiedene Gitterperioden. Die roten Punkte markieren die Differenzen der induzierten Ladungsträger unter und außerhalb des Gitters. Während Streufeldeffekte für Perioden über  $a = 200\text{nm}$  keine wesentliche Rolle spielen, müssen sie bei kürzeren Perioden berücksichtigt werden. Die Differenz der Ladungsträgerdichten bei einer Periode von  $a = 100\text{nm}$  liegt bei  $n = 3,7 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ . Eigene Messungen zeigen, dass man bei einer Dicke des Dielektrikums von  $d = 22\text{nm}$  durchaus eine Topgatespannung von bis zu  $V_{tg} = +30V$  anlegen kann. Die erreichbare Modulation liegt in dieser Konfiguration immer noch zwei Größenordnungen höher als bei den

typischen Werten von Electron-Hole-Puddles (vgl. dazu [15]), wodurch man im Experiment ein Übergitter am Graphen erzeugen kann.



**Abbildung 4.3:** Simulation der induzierten Ladungsträger eines lateral strukturierten Topgates in Abhängigkeit der angelegten Topgatespannung. Gemäß des Plattenkondensatormodells ist die Anzahl der induzierten Ladungsträger direkt proportional zur angelegten Spannung, wobei die Proportionalitätskonstante durch Streufeldefekte reduziert wird.

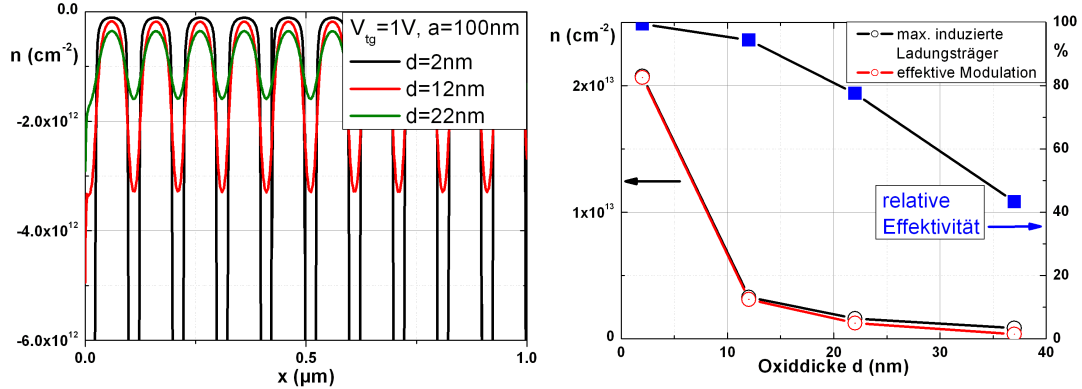
Der linke Graph in Abbildung 4.3 zeigt die lokale Abhängigkeit der induzierten Elektronen in einer Graphenprobe beim Anlegen verschiedener Spannungen an die Topgatestreifen. Als Dicke des Topgatedielektrikums wurde wiederum  $d = 22\text{nm}$  genommen. Die Periodizität wurde mit  $a = 100\text{nm}$  so gewählt, dass Streufeldefekte die nicht topgegateten Bereiche beeinflussen. Es ist gut zu erkennen, dass sowohl die maximal induzierte Anzahl der Elektronen, als auch die Anzahl der Elektronen außerhalb des Gatebereichs zunehmen, je höher die Topgatespannung gewählt wird.

Der rechte Graph in Abbildung 4.3 beschreibt die Anzahl der induzierten Ladungsträger abhängig von der Topgatespannung. Die maximale Ladungsträgerdichte zeigt gemäß des Plattenkondensatormodells eine lineare Abhängigkeit. Die Streufeldefekte kurzperiodischer Gitter verringern die Proportionalitätskonstante. Somit wird die effektive Modulation, also die Differenz der Dichten zwischen maximal induzierter Ladungsträger unter dem Topgate und streufeldinduzierter Ladungsträger außerhalb davon, geringer, je kleiner die Periode der Topgatestreifen gewählt wird (vgl. Abbildung 4.2).

Der linke Graph in Abbildung 4.4 zeigt die lokale Abhängigkeit induzierter Elektronen bei einer Topgatespannung von  $V_{tg} = +1\text{V}$  bei Variation der Dicke des Topgatedielektrikums. Die Periode wurde wiederum auf  $a = 100\text{nm}$  festgelegt. Da das Plattenkondensatormodell eine  $1/d$ -Abhängigkeit der induzierten Ladungsträgerdichte voraussagt, zeigt sich in der Simulation eine sensible Abhängigkeit der Anzahl der maximal induzierten Ladungsträger, die für größere Dicken stark abnimmt. Darüber hinaus erhöhen dickere Topgatedielektrika die Streufeldefek-

te, was sich in der Zunahme der Ladungsträgerdichte außerhalb des gegateten Bereichs widerspiegelt.

Der rechte Graph in Abbildung 4.4 zeigt die maximale Anzahl der induzierten Ladungsträger und die effektive Modulation als Differenz der Ladungsträgerdichte unter dem Topgate und außerhalb davon. Bereits bei einer Dicke von  $d = 22\text{nm}$  beträgt die relative Effektivität der Modulation nur noch 77,5% und sinkt bei einer Dicke von  $d = 37\text{nm}$  auf 43,3%. Dies bedeutet, dass bei dickeren Topgatedielektrika eine Modulation nur mit großen Spannungen am Topgate erreicht werden kann.



**Abbildung 4.4:** Simulation der induzierten Ladungsträger eines lateral strukturierten Topgates in Abhängigkeit der Dicke des Topgatedielektrikums. Je dicker das Topgatedielektrikum ist, desto ineffektiver kann die Modulation der Ladungsträgerdichte gestaltet werden.

Als zentrales Ergebnis der FEM-Simulationen lässt sich zusammenfassen, dass in erster Linie die Periode und die Dicke des Topgatedielektrikums ausschlaggebend für die Art der Modulation einer Graphenübergitterstruktur sind. Die Ergebnisse aus diesem Kapitel bilden dabei eine notwendige Voraussetzung, um im Experiment qualitativ und quantitativ entscheiden zu können, in wie weit durch das Topgate eine Modulation der Ladungsträgerdichte erreicht wird. Die Simulationen zeigen zudem auf, dass eine rechteckige Modulation nicht erreicht werden kann, wenn man die geometrischen Abmessungen der fabrizierten Proben berücksichtigt. Die Art der Modulation, die auf Ladungsträger in Graphen mit Linientopgates wirkt, kann somit weitestgehend als kosinusförmig angenommen werden.



## 5. Auswertung der Messungen von Graphenproben mit strukturierten Topgates

In diesem Kapitel sollen die zentralen Ergebnisse aus den Messungen von Graphenproben mit strukturierten Topgates präsentiert werden. Wie die Simulationen aus Kapitel 4 zeigen, werden die Resultate stark davon abhängen, welche Probenparameter bei der Herstellung gewählt wurden. Insbesondere die Dicke des Topgatedielektrikums und die Gitterperiode führen zu interessanten Unterschieden in den einzelnen Graphenstrukturen. Im Folgenden sollen nun exemplarisch Proben mit verschiedenen Prozessparametern vorgestellt werden und abschließend die physikalischen Gemeinsamkeiten erläutert und diskutiert werden.

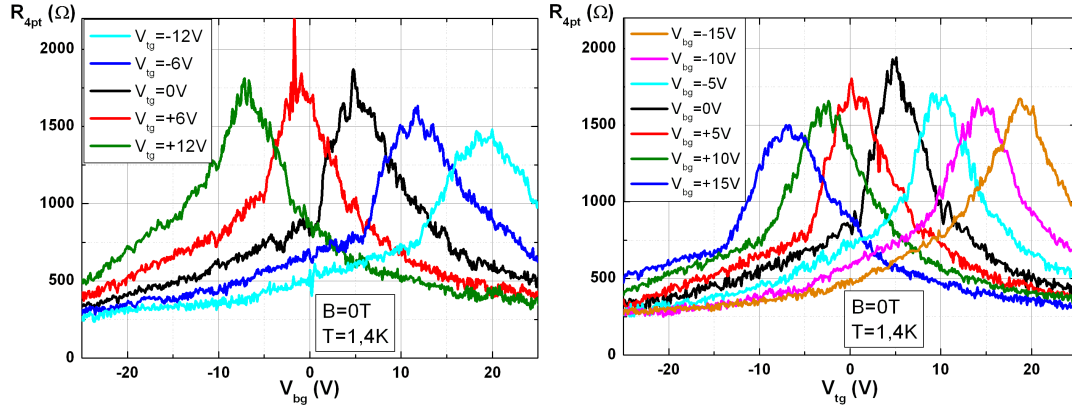
### 5.1. Probe A: Modulation mit einem zweidimensionalen Säulenarray

Bei Probe A handelt es sich um eine Graphenmonolage auf einem 300nm SiO<sub>2</sub>-Substrat. Das Topgate wurde mit dem in Kapitel 3.2.1 beschriebenen in-situ-annealing ALD-Verfahren gewachsen. Dabei wurde bei kurzen Spülzeiten von fünf Sekunden 10nm Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bei einer Temperatur von 100°C hergestellt. Während des Hochheizens auf eine Endtemperatur von 225°C wurde bereits mit der Deposition weiterer 30nm Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bei gleicher Spülzeit begonnen. Abschließend wurde die Probe zwei Stunden in der ALD-Probenkammer bei 225°C ausgehärtet.

Für die Modulation des Topgates wurde ein Säulenarray mit einer Periode von 150nm strukturiert. Die Säulen sind in einer Höhe von etwa 150nm über dem Dielektrikum verbunden. Für alle folgenden Messungen betrug die Temperatur an der Probe 1,4K.

Die Probe selbst besitzt eine Hallstruktur mit fünf Hallpaaren und einem Geometriefaktor  $L/W = 3\mu\text{m}/4\mu\text{m} = 0,75$ . Für den Abgriff von Vierpunkt- und Hallspannungen wurde bei Backgatesweeps festgestellt, dass die einzelnen Messfelder sowohl unterschiedliche Lagen der Diracpunkte als auch unterschiedliche Breiten der Dirackurve aufweisen. Daraus kann man schließen, dass die Probe mit einer Länge von 20μm von Source- zu Drainkontakt lokal unterschiedlich stark fremd

dotiert ist. Diese Dotierung kann durch PMMA-Rückstände vorheriger Prozessierungsschritte oder durch den ALD-Prozess bedingt sein. Die folgenden Messungen beschränken sich auf jenes Hallfeld mit der besten Probenqualität. Damit ist das Feld gemeint, welches bei einem Backgatesweep die spitzeste Dirackurve und die damit verbundene höchste Beweglichkeit zeigt und dessen Diracpunkt am nächsten bei  $V_{bg} = 0V$  liegt.



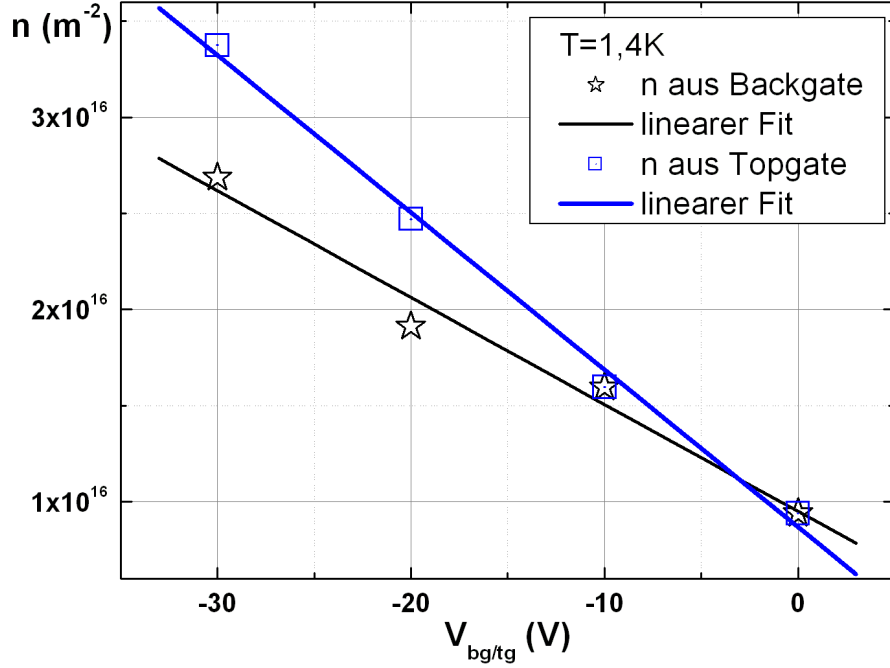
**Abbildung 5.1:** Probe A: Top- und Backgatesweeps bei  $T=1,4K$  und  $B=0T$ . Die Graphenprobe ist leicht p-dotiert und besitzt einen auffallend geringen Widerstandswert am Ladungsneutralitätspunkt. Insbesondere das Abfallen des Widerstandswertes am Diracpunkt bei den Topgatesweeps für  $V_{bg} \neq 0V$  deutet darauf hin, dass das Topgate eine modulierende Wirkung auf die darunter liegende Graphenstruktur besitzt.

Die Graphen in Abbildung 5.1 zeigen Back- und Topgatesweeps der Graphenmonolage ohne Magnetfeld. Der Diracpunkt bei  $V_{tg} = 0V$  liegt bei einem Backgatesweep bei  $V_{bg} = +5V$ , veränderte seine Lage im Laufe der Messungen aber nach  $V_{bg} = +10V$ , was einer intrinsischen p-Dotierung von  $3,6 \cdot 10^{11} cm^{-2}$  bis  $7,2 \cdot 10^{11} cm^{-2}$  entspricht. Der Schichtwiderstand des Graphens am Diracpunkt beträgt knapp  $2500\Omega$  und ist damit im Vergleich zu anderen Proben auffallend niedrig. Die Beweglichkeiten für Elektronen und Löcher aus dem Backgatesweep ohne angelegter Topgatespannung betragen  $\mu_e = 4400 \frac{cm^2}{Vs}$  und  $\mu_h = 4600 \frac{cm^2}{Vs}$ . Durch das Anlegen einer Topgatespannung verschiebt sich zwar die Lage des Ladungsneutralitätspunktes, jedoch zeigt sich bis auf einen geringen Abfall des absoluten Widerstandswertes am Diracpunkt, kein Einfluss einer möglichen Modulation.

Die Topgatesweeps bei verschiedenen Backgatespannungen zeigen erwartungsgemäß gleichermaßen eine Verschiebung des Diracpunktes. Up- und Downsweeps des Topgates weisen Hysteresen von etwa einem Volt auf. Der Abfall des Widerstandswertes am Ladungsneutralitätspunkt selbst fällt hier deutlicher aus und die Halbwertsbreite der Kurven steigt. Dies ist zwar kein eindeutiger Beweis für das Erreichen einer Modulation innerhalb der Graphenstruktur, jedoch lässt die mit der höheren Breite der Kurven verbundene, niedrigere Beweglichkeit auf ein



höheres Maß an lokaler Ungleichheit der Ladungsträgerdichten im System schließen.



**Abbildung 5.2:** Probe A: Gateeffektivität aus den Steigungen der Hallgerade. Das säulenartige Topgate kann bei gleicher Spannung am Backgate  $\zeta = 1,5$ -mal mehr Ladungsträger induzieren. Dieser Wert beträgt kaum ein Zehntel eines äquivalenten, flächendeckenden Topgates und lässt somit darauf schließen, dass der Deckel über der säulenartigen Struktur nur einen geringen Einfluss auf die Transporteigenschaften besitzt.

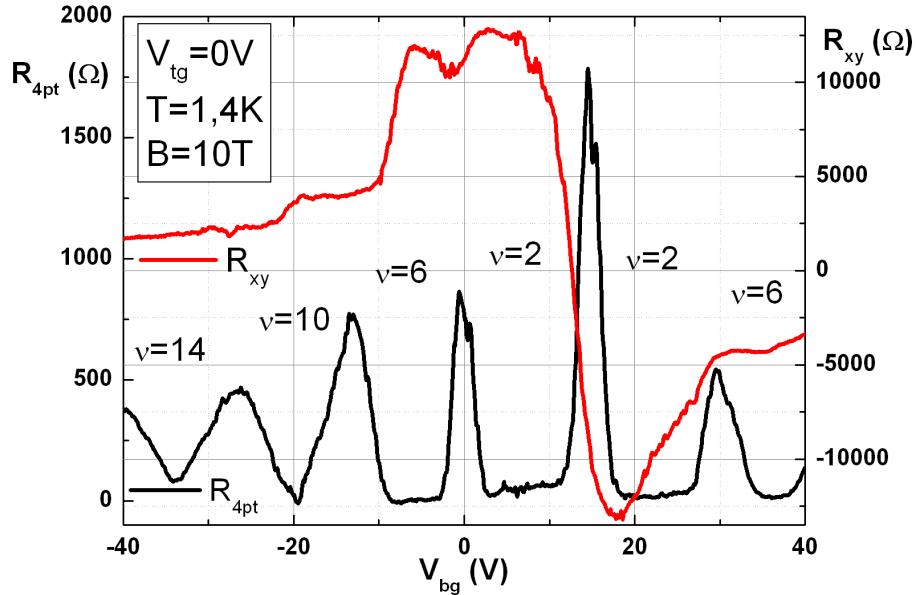
Um eine generelle Aussage über die Effektivität und die Qualität des Topgates treffen zu können, wurden die damit induzierten Ladungsträgerdichten ermittelt. Dazu wurden magnetfeldabhängige Messungen des Hallwiderstands gemacht und diese anschließend für Gatespannungen zwischen  $V_{tg,bg} = 0V, -10V, -20V, -30V$  bei jeweils neutralem Gate  $V_{bg,tg} = 0V$  linear zwischen  $B = -2T$  und  $B = +2T$  angefüttet. Gemäß Gleichung 2.25 wurden die induzierten Ladungsträgerdichten ermittelt.

Abbildung 5.2 zeigt die Abhängigkeit der induzierten Ladungsträgerdichte von der jeweiligen Gatespannung. Obgleich die Datenpunkte für  $V_{tg} = -10V$  und  $V_{bg} = -10V$  ungewöhnlich nahe beieinander liegen, soll der Zusammenhang linear angenommen werden. Die Kopplungskonstante beträgt  $\frac{n}{V_{bg}} = 5,6 \cdot 10^{10} V^{-1} cm^{-2}$  und liegt 22% niedriger als der erwartete Wert für ein 300nm dickes  $SiO_2$ -Gate. Für das Topgate kann eine Kopplungskonstante von  $\frac{n}{V_{tg}} = 8,2 \cdot 10^{10} V^{-1} cm^{-2}$  ermittelt werden.

Der Quotient der beiden Werte zeigt, dass das Topgate eine Gateeffizienz besitzt, die nur um einen Faktor von  $\zeta = 1,5$  höher ist. Im Vergleich zum konventionellen, 300nm dicken  $\text{SiO}_2$ -Backgate müsste die Gateeffizienz für ein flächendeckendes  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Topgate mit  $\epsilon_r = 7,5$  und einer Dicke von 40nm einen Wert von  $\zeta = 14,4$  haben.

Dieses Ergebnis legt die Vermutung nahe, dass der Topgatedeckel, mit denen die einzelnen Säulen verbunden sind, keinen wesentlichen Einfluss auf die lokale Änderung der Ladungsträgerdichte besitzt. Vielmehr sind es die Säulenspitzen selbst, die mit nicht zu vernachlässigbaren Streufeldeffekten bei einem 40nm dicken Gate die Transporteigenschaften der Graphenmonolage bestimmen.

Zur weiteren Analyse der Modulationseigenschaften des Topgates wurden magnetfeldabhängige Messungen durchgeführt. Längs- und Hallwiderstände bei Magnetfeldsweeps nahe am Diracpunkt zeigen lediglich die erwarteten Kurven mit Shubnikov-de Haas-Oszillationen und Quantenhallplateaus, bei denen nur jene mit Füllfaktor  $\nu = \pm 2$  und  $\nu = \pm 6$  gut beobachtbar sind.



**Abbildung 5.3:** Probe A: Backgatesweep mit leichter Topgatemodulation bei  $B=10\text{T}$ . Das Auftreten der Plateaus bei  $\nu = 2$  gestaltet sich für den Elektronen- und den Löcherbereich asymmetrisch. Das schnelle Zusammenbrechen des Quantenhallzustands im Elektronenbereich kann damit begründet werden, dass speziell in dieser Messkonfiguration eine Unordnung der Ladungsträger vergleichbar mit den Dichten typischer Electron-Hole-Puddles erreicht wurde.

Zusätzlich wurden für  $V_{bg} = V_{tg} = 0\text{V}$  anhand der abfallenden Hallspannung bei  $B = 2,5\text{T}$  weitere Paare aus positiven Backgate- und negativen Topgate-Spannungen ermittelt. Ziel dieses Experiments ist es, bei jeweils gleicher Ladungsträgerdichte in der Graphenprobe unterschiedliche Modulationsstärken zu erzeugen.

gen. Allerdings zeigten sich auch hier im Quantenhallregime keine besonderen Auffälligkeiten.

Für weitere Untersuchungen der Modulationseigenschaften dieser Struktur wurden gateabhängige Messungen bei einem Magnetfeld von  $B = 10T$  gemacht. Abbildung 5.3 zeigt Längs- und Hallwiderstand eines Backgatesweeps bei einer Topgate-Spannung von  $V_{tg} = 0V$ . Dieser Wert ist um fünf Volt vom eigentlichen Ladungsneutralitätspunkt entfernt und entspricht einer vergleichbar leichten Löcherdichte von  $4,1 \cdot 10^{11} cm^{-2}$ . Bei dieser konstanten Modulation wird nun mit dem Backgate die gesamte Ladungsträgerdichte variiert.

Interessant ist zunächst, dass die Minima der Shubnikov-de Haas-Oszillationen nicht exakt mit den Hallplateaus zusammenfallen. Dies kann, wie eingangs erwähnt, mit lokalen Inhomogenitäten und unterschiedlicher, intrinsischer Dotierung der Graphenprobe zusammenhängen. Sowohl im Längs- als auch im Hallwiderstand offenbaren sich die erwarteten Werte zu den Füllfaktoren  $\nu = 2, 6, 10, 14$ .

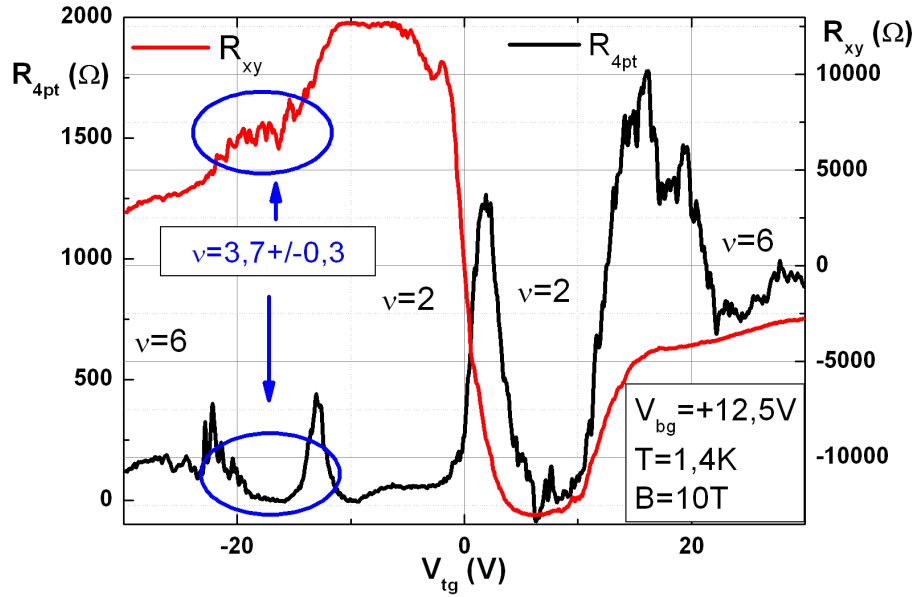
Das Auftreten der Quantenhallplateaus fällt für den mit dem Backgate eingestellten Löcher- bzw. Elektronenbereich asymmetrisch aus. Insbesondere das zu dem Wert  $\nu = 2$  gehörige Plateau ist im Löcherbereich zwischen  $V_{bg} = [-6V, +7V]$  ausgeprägter, während es im Elektronenbereich nur angedeutet bei  $V_{bg} = +18V$  erscheint. Die Differenz dieser Spannung zum Nulldurchgang des Hallwiderstandes bei  $V_{bg} = +12,5V$  liegt bei  $\Delta V_{bg} = 5,5V$  und entspricht unter Berücksichtigung der vorher ermittelten Kopplungskonstante einer induzierten Ladungsträgerdichte von  $3,08 \cdot 10^{11} cm^{-2}$ . Dies bedeutet im Vergleich zu der Modulation, dass hier eine Mischung der Ladungsträger aus Löchern unter den Säulen und Elektronen außerhalb stattfindet. Die durch das Topgate eingebrachte Unordnung liegt hier nur im Bereich von Electron-Hole-Puddles, reicht aber aus, um die vollständige Quantisierung des  $\nu = 2$ -Zustands bei  $V_{bg} = +18V$  zu verhindern.

Um die Modulationseigenschaften der Struktur weiter zu ergründen, wurden bei einem Magnetfeld von  $B = 10T$  Topgatesweeps durchgeführt. Dabei wurde das Backgate so gewählt, dass man sich bei  $V_{tg} = 0V$  nahe am Ladungsneutralitätspunkt befindet.

Abbildung 5.4 zeigt Längs- und Hallwiderstand bei einer Modulation mit dem Topgate bei einer Backgatespannung von  $V_{bg} = +12,5V$ . Auch hier zeigt sich ähnlich der Messung in Abbildung 5.3 ein leichter Versatz der Quantenhallplateaus zu den Shubnikov-de Haas-Oszillationen.

Die Ladungsneutralität gemessen am Längswiderstand befindet sich bei  $V_{tg} = +1,8V$ . Der Abstand dieses Wertes zu den Shubnikov-de Haas-Minima, die man den Füllfaktoren  $\nu = \pm 2$  und  $\nu = \pm 6$  zuordnen kann, ist annähernd symmetrisch. Er beträgt  $\Delta V_{tg} \approx 8V$  für  $\nu = \pm 2$  und  $\Delta V_{tg} \approx 22V$  für  $\nu = \pm 6$ .

Zusätzlich zu den erwarteten Werten erscheint bei einer Topgatespannung von  $V_{tg} = (-17 \pm 1)V$  ein weiteres, ausgeprägtes Minimum im Längswiderstand. Das zugehörige Quantenhallplateau würde einem Füllfaktor von  $\nu = (3,7 \pm 0,3)$  entsprechen. Interessanterweise erscheint dieses Plateau nicht bei positiver Topgate-Spannung. Es kommt vielmehr zu einem ungewöhnlich hohen Widerstand der Vierpunktkurve bei  $V_{tg} \approx +16V$ , was gegen einen Quantisierungseffekt spricht.



**Abbildung 5.4:** Probe A: Topgatesweep im Elektronenregime nahe am Diracpunkt bei  $B=10T$ . Im Löcherbereich erscheint ein zusätzliches Plateau im Hallwiderstand und ein Shubnikov-de Haas-Minimum im Längswiderstand. Da in der Probenkonfiguration eine Aufhebung der Spin- oder Valleyentartung ausgeschlossen werden kann, muss dieser Zustand in einem direkten Zusammenhang mit den Zyklotronradien der Ladungsträger und dem Durchmesser und Abstand des Topgatesäulenarrays stehen.

Es stellt sich nun die Frage nach der Ursache des Hallplateaus bei der Topgatespannung  $V_{tg} = (-17 \pm 1)V$ . Innerhalb der Fehlergrenzen für den bestimmten Füllfaktor käme auch der Wert  $\nu = 4$  in Frage, was auf die Aufhebung einer Entartung der Landaniveaus schließen ließe. Da die Backgatesweeps in Abbildung 5.3 keine Aufhebung der Spinentartung zeigen und das Topgate keinerlei magnetischen Einfluss auf die Graphenprobe hat, kann die Aufhebung der Spinentartung nicht ursächlich für den Quantenzustand sein. Auch eine mögliche Aufhebung der Valleyentartung in Graphen kann hier ausgeschlossen werden, denn hierzu müsste das Topgate eine unterschiedliche Wirkung auf die beiden Untergitter in Graphen haben, was bei einem makroskopischen Säulendurchmesser von etwa 100nm nicht plausibel erscheint.

Eine Aufhebung der Valleyentartung könnte dennoch in Betracht kommen, falls das zweidimensionale Säulenarray den gleichen Effekt auf Graphen hätte wie ein Antidotgitter. Da es in solchen Systemen zu einer Bandlücke in Graphen kommt, kann die Valleyentartung des nullten Landaniveaus aufgehoben werden [76]. Eine Grundvoraussetzung hierfür wäre allerdings ein divergierender Hallwiderstand beim Durchgang der Gatespannung durch den Ladungsneutralitätspunkt. Der Hallwiderstand in Abbildung 5.4 divergiert an dieser Stelle jedoch nicht, wodurch

man nicht von der Entstehung einer Bandlücke durch das Säulentopgate ausgehen darf.

Das Randkanalbild des Quantenhalleffekts in Hinblick auf die zweidimensionale Modulation mit Topgatesäulen bietet eine alternative Erklärungsmöglichkeit dieses Phänomens. Durch die Wahl des Backgates befindet man sich bei negativen Topgatespannungen im Löcherbereich unterhalb den Säulen. Der Säulendurchmesser beträgt  $100\text{nm}$  und der Abstand  $150\text{nm}$ , so dass zwischen den Säulen ein Platz von  $50\text{nm}$  bleibt. Dieser Zwischenraum ist realistisch betrachtet noch kleiner, wenn die Streufeldeffekte des Topgates mit berücksichtigt werden.

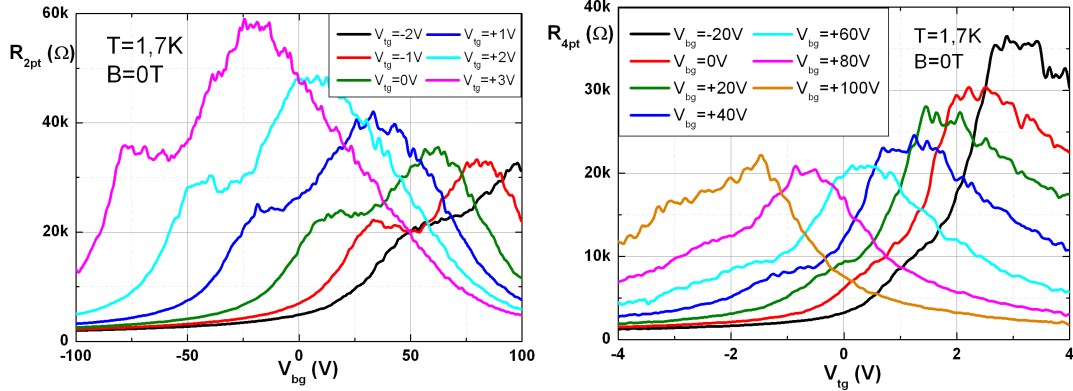
Ausschlaggebend für den Transport in den Randkanälen sind die Löcherzonen unter dem Topgate. Berechnet man aus der Steigung der Hallgerade die Ladungsträgerdichte  $n_s$  beim Zustand  $\nu = (3, 7 \pm 0, 3)$ , so lässt sich der zugehörige Zyklotrondurchmesser der Ladungsträger bestimmen gemäß  $d_c = \frac{2\hbar\sqrt{\pi n_s}}{eB} = (22 \pm 1)\text{nm}$ . Unter Berücksichtigung der Reduktion und der Aufweichung des Bereiches, der elektrostatisch nicht von dem strukturierten Topgate beeinflusst wird, liegt dieser Wert im Bereich des Säulenabstands. Dies bedeutet insbesondere, dass die Zyklotrondurchmesser im Zwischenraum keinen Platz mehr finden, damit an Grenzflächen streuen und zu einem weiteren, quantisierten Ladungstransport beitragen können.

## 5.2. Probe B: Diskussion über die Verwendung kurzer Perioden von $a = 80\text{nm}$ , dünnen Topgatedielektrika und Graphenbilagen

Anhand der folgenden Messungen sollen nun zum Einen die technische Machbarkeit von Linienübergittern mit kurzen Perioden und gleichzeitig die Minimierung der Dicke des Topgatedielektrikums im Fokus stehen. Zum Anderen soll darauf eingegangen werden, welche Besonderheiten und Schwierigkeiten sich bei der Untersuchung von Graphenbilagen ergeben.

Die Graphenbilage befindet sich auf einem Chip mit  $285\text{nm}$   $\text{SiO}_2$  und besteht aus einer geätzten Hallbar mit sechs Kontakten, von denen zwei Source- und Drainanschluss bilden. Der Geometriefaktor ist  $L/W = \frac{2,5\mu\text{m}}{1\mu\text{m}} = 2,5$ . Für die Fabrikation des Topgatedielektrikums wurden dreimal hintereinander je  $1,5\text{nm}$  Aluminium bei gekühltem Probenhalter im Ultrahochvakuum aufgedampft und jeweils anschließend für mindestens eine Stunde zur Oxidation in reiner Sauerstoffatmosphäre belassen. Die gesamte Dicke der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Schicht kann mit Hilfe von AFM-Untersuchungen auf ungefähr  $9\text{nm}$  bestimmt werden. Diese dünne Schicht erweist sich bei Topgatespannungen bis zu vier Volt als frei von Leckströmen.

Das Topgate wurde als linienartiges Übergitter mit Periode von  $a = 80\text{nm}$  konstruiert. Es liegt damit nahe an der Untergrenze, was mit dem technischen Equipment zur Probenprozessierung möglich ist.



**Abbildung 5.5:** Probe B: Top- und Backgatesweeps bei  $T=1,7\text{K}$  und  $B=0\text{T}$ . Steigende Widerstandswerte am Diracpunkt bei unterschiedlich hohen Gatespannungen zeigen, dass es sich hier um eine Graphenbilage handelt. Zudem besitzt die Probe eine hohe p-Dotierung, welche entweder von nicht oxidiertem Aluminium oder elementarem Sauerstoff herkommen könnte.

Die Graphen in Abbildung 5.5 zeigen die Abhängigkeit des Längswiderstandes von den jeweiligen Gatespannungen. Der Diracpunkt im Backgatesweep liegt bei  $V_{bg} = +62\text{V}$  und stellt eine hohe, intrinsische p-Dotierung von  $4,7 \cdot 10^{12}\text{cm}^{-2}$  dar. Diese Dotierung kann zwei unterschiedliche Ursachen haben. Entweder das in drei Einzelschritten aufgedampfte Aluminium wurde nicht durchgehend oxidiert und elementare Aluminiumatome bewirken die Dotierung, oder es wurde elementarer Sauerstoff zwischen den einzelnen Aluminiumoxidschichten adsorbiert, was ebenso eine p-Dotierung des Graphens zur Folge hätte.

Vergleicht man die Diracpunkte in den Gatesweeps, so stellt sich heraus, dass das Topgate eine 25fach höhere Effektivität im Vergleich zum Backgate besitzt. Dieser hohe Wert liegt darin begründet, dass die Dicke des Dielektrikums relativ dünn ist. Zudem ist bei einer Periode von  $80\text{nm}$  und einer effektiven Streifenbreite von ungefähr  $20\text{nm}$  ein Viertel der Fläche des Graphens mit dem Topgate bedeckt. Ziel dieser Konfiguration aus dünnem Topgatedielektrikum und geringer Streifenperiode sollte es sein, scharfe Modulationskanten und ballistischen Transport im Bilayer über mehrere Gitterperioden hinweg zu erreichen. Die Backgatesweeps in Abbildung 5.5 deuten darauf hin, dass dieses Vorhaben durch Streufeldefekte nicht erreicht werden konnte. Man sieht im Backgatesweep zwei Diracpunkte, von denen der mit dem jeweils größeren Widerstandswert den Zonen unter den Topgatestreifen und der mit dem kleineren Widerstandswert den Zonen außerhalb der Topgatestreifen zugeordnet werden kann. Der letztere davon sollte, sofern keine Streufeldefekte von den Topgatestreifen vorhanden sind, unabhängig der eingestellten Topgatespannung stets bei der gleichen Backgatespannung zu finden sein.

Durch die kurze Periode skaliert dieser aber mit dem anderen Diracpunkt mit, was für eine stark globale Wirkung des Topgates spricht.

Dass man in der Probe jedoch trotzdem eine Modulation mit pn-Übergängen erreichen kann, zeigt die Flankensteilheit der Topgatekurven in Abbildung 5.5. Bei einer eingestellten Backgatespannung von  $V_{bg} = +100\text{V}$  fällt der Widerstandsgraph im unipolaren Elektronenregime rechts des Diracpunktes steiler ab als im bipolaren pn-Bereich für  $V_{tg} < 1,5\text{V}$ , bei dem unter dem Topgate vorwiegend Löcher und außerhalb dieser Zone Elektronen für den Transport verantwortlich sind. Dieser Effekt ist wohlbekannt und bietet ein Indiz für Klein-Tunnel-Effekte in Graphenstrukturen (vgl. dazu [77]). Kehrt man die Polarität der Ladungsträger mit dem Backgate um (vgl. dazu  $V_{bg} = +20\text{V}$  in den Topgatesweeps in Abbildung 5.5), so befindet sich der bipolare pn-Bereich rechts vom Diracpunkt und man findet hier eine geringere Flankensteilheit.

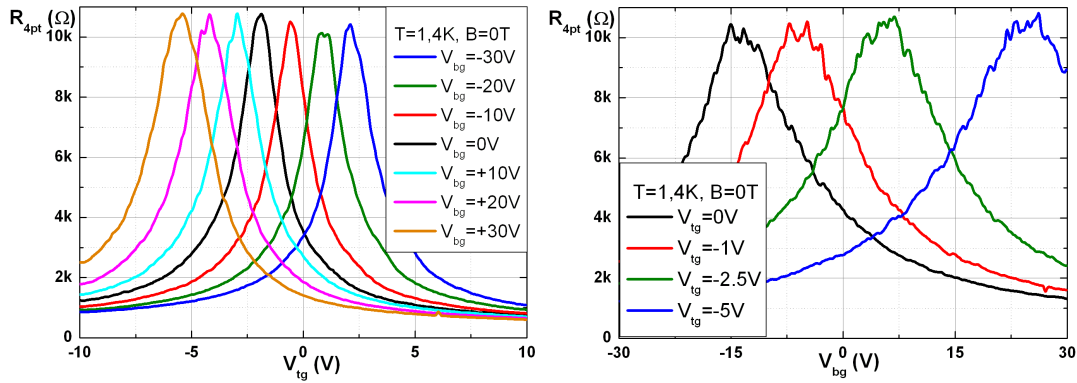
Abschließend sollen noch die Besonderheiten von Graphenbilagen kurz erwähnt werden. Die Bandstruktur von doppellagigem Graphen ähnelt der von Graphenmonolagen. Auch hier berühren sich Valenz- und Leitungsband bei  $E_F = 0$ , wobei beide Bänder leicht parabolisch sind und damit die Ladungsträger massive Diracfermionen bilden. Verspannt man Graphenbilagen mit paritären Back- und Topgatespannungen, so bildet sich eine Bandlücke zwischen den Bändern und der Widerstand am Diracpunkt steigt [78] [79].

Dieser Effekt zeigt sich auch in den gateabhängigen Messungen in Abbildung 5.5. Der geringste Widerstandswert am Diracpunkt findet sich jeweils dann, wenn mit dem anderen Gate Ladungsneutralität eingestellt wird. Durch die Erzeugung von isolierenden Zuständen in Graphenbilagen zwischen p- und n-Bereichen der Probe kann man die Modulation mit dem Topgate damit auch nicht mehr beliebig einstellen. Zusätzlich weisen Graphenbilagen grundsätzlich eine bis um einen Faktor zwei geringere Beweglichkeit auf als parallel dazu hergestellte Graphenmonolagen, was in einer deutlich verminderten mittleren freien Weglänge resultiert.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass sich die hier benutzten Probenparameter eher nicht eignen, um Effekte multipler pn-Übergänge oder Übergittereffekte in Graphen nachzuweisen. Die Herstellung eines dünnen Topgates mittels drei gewachsenen Seedlayern ist zwar bei angelegten Spannungen bis  $V_{tg} = \pm 4\text{V}$  möglich, aber die starken Dotierungseffekte bedingt durch entweder Aluminium oder Sauerstoff verschlechtern die Transporteigenschaften im Material erheblich. Dünne Streifenperioden des Topgates von  $80\text{nm}$  oder weniger sind auch nicht geeignet für die Untersuchungen, da die Breite eines Streifens selbst schon mindestens  $20\text{nm}$  beträgt und Streufeldefekte dominant im Vergleich zur Modulationseigenschaft des Topgates werden. Auch die Untersuchungen an Graphenbilagen gestalten sich als schwierig, da die Beweglichkeiten dieser Proben meist zu gering sind und man mit dual gegateten Strukturen isolierende Zustände in den Proben erzeugt.

### 5.3. Probe C: Laterale Modulation mit Streifen der Periode $a = 100nm$ und einem $d = 40nm$ dicken $Al_2O_3$ -Topgatedielektrikum

Bei dieser Probe handelt es sich um eine Graphenmonolage auf einem  $300nm$   $SiO_2$ -Substrat und einer herausgeätzten Hallbar mit Geometriefaktor  $L/W = \frac{5,5\mu m}{2\mu m} = 2,75$ . Das Topgatedielektrikum wurde analog zu der in Kapitel 5.1 beschriebenen Probe A mit in-situ-annealing ALD hergestellt und besteht aus einer  $40nm$  dicken  $Al_2O_3$ -Schicht. Die Streifen des Topgates sind periodisch im Abstand von  $100nm$  angeordnet.



**Abbildung 5.6:** Probe C: Top- und Backgatesweeps bei  $B = 0T$  und  $T = 1,7K$ . Weder eine Asymmetrie in den Topgatekurven bei verschiedenen Backgatespannungen noch das Auftreten eines weiteren Diracpunktes in den Backgatekurven bei unterschiedlichen Topgatespannungen kann beobachtet werden. Dies indiziert in Übereinstimmung mit FEM-Simulationen, dass das Topgate eine eher planare als modulierende Wirkung auf die Graphenprobe hat.

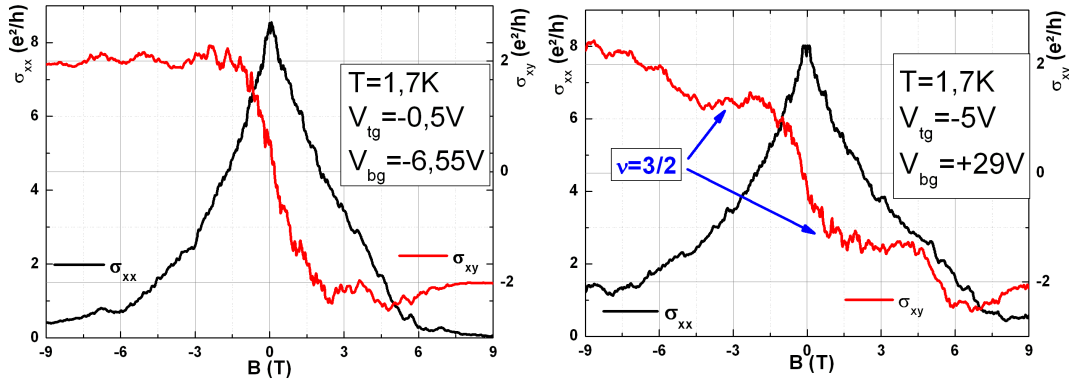
Zur Charakterisierung des elektrischen Transports wurden zunächst Top- und Backgatesweeps ohne äußeres Magnetfeld durchgeführt (vgl. Abbildung 5.6). Die Punkte der Ladungsneutralität bei jeweils spannungsfreiem Gegengate liegen bei  $V_{bg} = -13,7V$  und  $V_{tg} = -1,6V$ . Die Graphenprobe ist somit n-dotiert und die intrinsische Elektronendichte beträgt ziemlich exakt  $n = 10^{12}cm^{-2}$ .

Die Topgatesweeps in Abbildung 5.6 zeigen keine Asymmetrie und damit keine Anzeichen für Klein-Tunneln an pn-Übergängen. Auch die dazugehörigen Backgatesweeps zeigen keinen zweiten Diracpunkt, wie man ihn in etwa bei Graphenproben mit lokal unterschiedlichen Ladungsträgerkonzentrationen erwarten würde. Diese Tatsache deckt sich sowohl mit den Messungen der in Kapitel 5.1 vorgestellten Graphenstruktur mit gleicher Topgatedicke als auch mit den FEM-Simulationen aus Kapitel 4, wo Streufeldeffekte bei einer großen Dicke des Topgatedielektrikums dominant im Vergleich zur erreichbaren Modulation werden.



Erwartungsgemäß liegt der Wert für die Effektivität des Topgates 7,8-fach höher als die des Backgates. Aus den Messungen bei  $B = 0\text{T}$  wird ersichtlich, dass sich das Topgate eher wie ein planares Gate verhält. Die aus den Backgatesweeps extrahierte Beweglichkeit liegt bei  $\mu = 4200 \frac{\text{cm}^2}{\text{Vs}}$  und damit im gleichen Bereich wie bei der eingangs vorgestellten Probe mit säulenartigem Topgate.

Für eine weitere Charakterisierung der Probe wurden magnetfeldabhängige Messungen durchgeführt. Eine Analyse der Beweglichkeit aus den Hallgeraden ergibt Werte zwischen  $\mu = 3500 \frac{\text{cm}^2}{\text{Vs}}$  und  $\mu = 4350 \frac{\text{cm}^2}{\text{Vs}}$  und liegt damit im Bereich von den aus den Gatekurven ermittelten Daten. Die Graphen in Abbildung 5.7 zeigen Längs- und Halleitfähigkeiten abhängig von einem äußeren Magnetfeld. Bei dem linken Graphen wurden Back- und Topgatespannung so gewählt, dass im darunter liegenden Graphen eine leichte pp'-p-Modulation im unipolaren Löcherbereich nahe am Ladungsneutralitätspunkt erzeugt wird. Die Halleitfähigkeit zeigt zunächst den typischen, linearen Anstieg und aufgrund der gering gewählten Ladungsträgerkonzentration erscheint bei einem Magnetfeld der Stärke  $B = \pm 2\text{T}$  das Hallplateau mit den Füllfaktor  $\nu = 2$ .

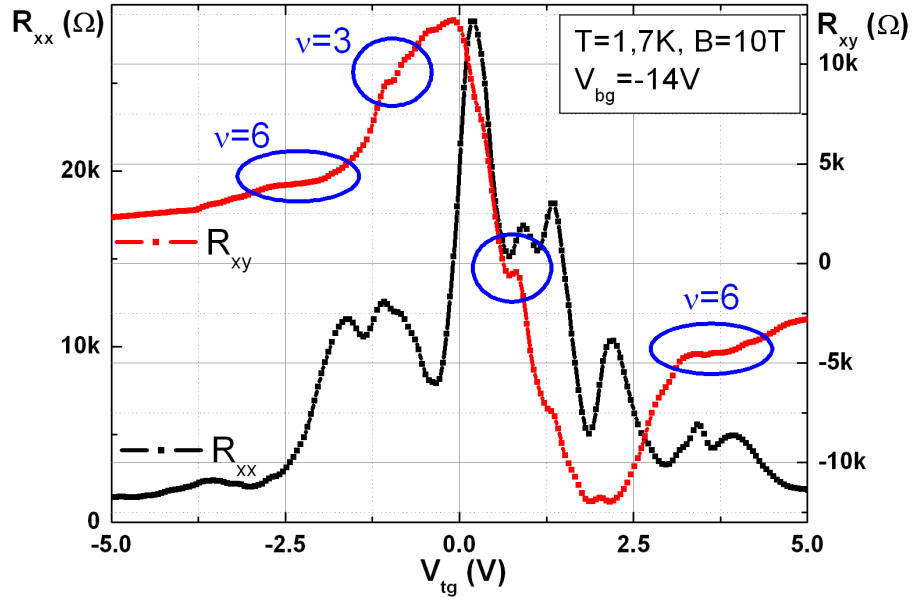


**Abbildung 5.7:** Probe C: Magnetfeldsweeps bei  $T = 1,7\text{K}$  bei zwei unterschiedlichen Modulationsarten. Der linke Graph zeigt bei leichter pp'-p-Modulation das  $\sigma_{xx} = 2\frac{e^2}{h}$ -Hallplateau für den Füllfaktor  $\nu = 2$ . Beim rechten Graph wurde die Modulation zehnfach höher gewählt und mit dem Backgate ein pnp-Übergitter eingestellt. Dadurch erscheinen neue Plateaus durch gemischte Füllfaktoren der einzelnen Bereiche.

Bei dem Magnetfeldsweep des rechten Graphen in Abbildung 5.7 wurden hingegen die Topgatespannung so gewählt, dass eine im Vergleich zum linken Graphen zehnfach höhere Modulation der Ladungsträgerdichte erreicht wird. Zusätzlich wurde die Backgatespannung so eingestellt, dass sich in der Probe eine annähernd symmetrische pnp-Modulation im bipolaren Bereich ausbildet. Neben den für  $|B| > 6\text{T}$  erscheinenden Hallplateaus für  $\nu = 2$  können zusätzlich weitere Plateaus beobachtet werden, die den Wert  $\sigma_{xy} = (1,4 \pm 0,1) \frac{e^2}{h}$  aufweisen.

Ein Vergleich mit der Theorie zu einfachen pn-Übergängen in Graphen führt zu dem Schluss, dass sich in multiplen Übergängen Quantenhallzustände mischen. Bei Betrachtung der Gleichung 2.34 für ein bipolares Regime kann dieses im Experiment auftretende Plateau dem Wert  $\sigma_{xy} = \frac{3}{2} \frac{e^2}{h}$  zugeordnet werden. Dies entspricht einer Mischung bipolarer Quantenhallzustände mit den Füllfaktoren  $\nu = 2$  und  $\nu' = 6$ .

Zur weiteren Untersuchung der Modulationseigenschaften der Struktur wurden Topgatesweeps bei einem Magnetfeld von  $B = 10T$  gemacht. Die Backgatespannung wurde mit  $V_{bg} = -14V$  so gewählt, dass in der gesamten Probe eine geringe Löcherkonzentration vorherrscht. Messungen bei hohen Topgatespannungen zeigen den gewohnten halbzahligen Quantenhalleffekt von Graphenmonolagen mit den dazugehörigen Shubnikov-de Haas-Oszillationen, während sich bei geringen Topgatespannungen einige Auffälligkeiten ergeben.

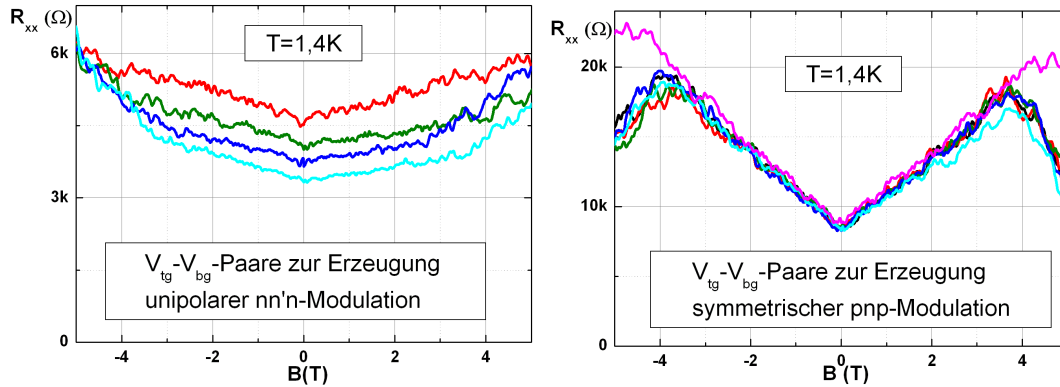


**Abbildung 5.8:** Probe C: Topgatesweeps bei  $B = +10T$  und  $T = 1,7K$ . Neben den Plateaus mit den Füllfaktoren  $\nu = 6$  und  $\nu = 2$  tritt das gemischte Plateau der Elektron- und Lochzustände  $\nu = \pm 6$  auf. Ein Dip im Hallwiderstand und zusätzliche Minima im Längswiderstand bei Ladungsneutralität legen den Schluss nahe, dass auch hier eine Mischung verschiedener Quantenzustände erreicht wird.

Abbildung 5.8 zeigt den dazugehörigen Längs- und Hallwiderstand innerhalb der Topgatespannung von  $V_{tg} = [-5V; +5V]$ . Die zu den Füllfaktoren  $\nu = 6$  und  $\nu = 2$  gehörigen Plateaus sind bei den Topgatespannungswerten  $V_{tg} = -2,4V$  und  $V_{tg} = +3,6V$  bzw.  $V_{tg} = -0,2V$  und  $V_{tg} = +2V$  gut zu erkennen. Zusätzlich zeigt sich bei  $V_{tg} = -1,05V$  ein weiteres Plateau mit einem Widerstandswert von  $R_{xy} \approx 8900\Omega$ . Im Zuge der Theorie der Mischung von Füllfaktoren kann diesem

Plateau der Wert  $\nu = 3$  zugeordnet werden, was einer Mischung von Loch- und Elektronenzuständen mit dem Wert  $\nu = \pm 6$  entspricht.

Interessanterweise weist die Hallkurve beim Nulldurchgang noch einen weiteren Dip auf. Theoretisch müsste die Kurve an diesem Punkt gegen unendlich divergieren. Im Experiment mit unstrukturierten Gates zeigt sich ein linearer Nulldurchgang. Dieses zusätzliche Feature könnte auf eine Mischung der Zustände  $\nu = \pm 2$  hinweisen. Auch die zusätzliche Oszillation des Längswiderstandes an jenem Punkt könnte diese These untermauern. Für eine eindeutige Zuordnung müsste die Probenqualität beziehungsweise deren Beweglichkeit besser sein. Generell kann man sagen, dass der Längswiderstand noch weitere, nicht zuordenbare Minima aufweist, welche auf weitere Zustände mit gemischten Füllfaktoren schließen lassen. Bei weiteren Untersuchungen zu den Längswiderständen und -leitfähigkeiten wurde deutlich, dass deren Steigung von den eingestellten Spannungswerten abhängig ist. Abbildung 5.9 zeigt die Abhängigkeit des Längswiderstandes bei kleinen Magnetfeldern einerseits für verschiedene nn'n-Modulationen und für symmetrische Modulationen im bipolaren Regime. Während der Widerstand im unipolaren Regime nur leicht parabolisch zunimmt, kann die Steigung im bipolaren Regime als linear betrachtet werden.



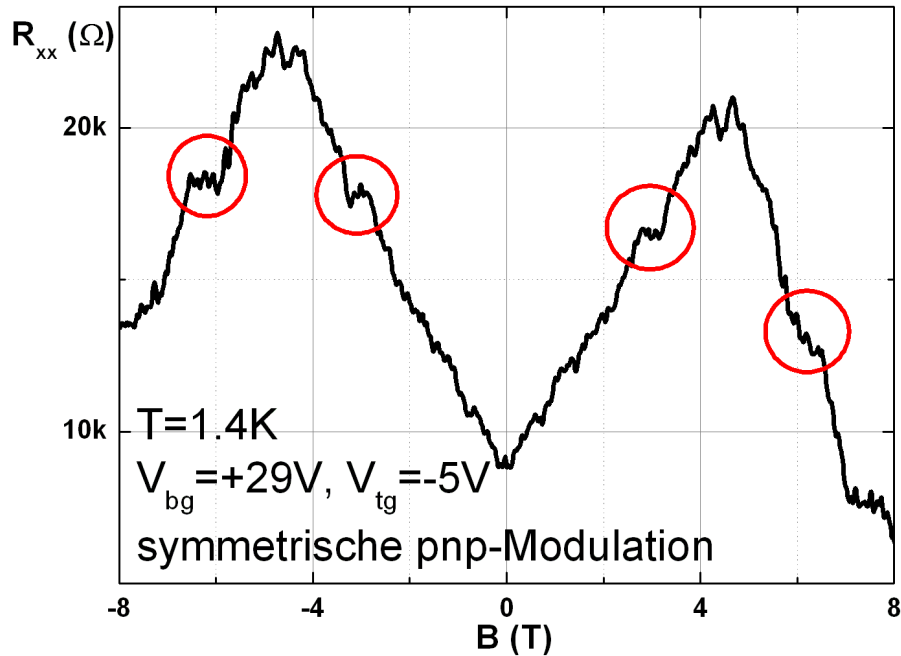
**Abbildung 5.9:** Probe C: Die Steigung des Magnetowiderstandes in Abhängigkeit der gewählten Modulation der Ladungsträger. Sie fällt bei unipolarer Modulation leicht parabolisch aus und verzeichnet in bipolarer Konfiguration einen stark linearen Anstieg. Grund hierfür ist neben den Modulationseigenschaften die Tatsache, dass das lateral strukturierte Topgate eine Unordnung und damit eine Inhomogenität der Ladungsträger in der Graphenprobe bewirkt.

Dieser Effekt kann zunächst nicht auf eine laterale Modulation des Topgates zurückgeführt werden. Experimente an Graphenproben, bei denen mit kontrolliertem Beschuss mit Galliumionen eine künstliche Unordnung erzeugt wurde, haben gezeigt, dass sich die Steigung des Magnetowiderstandes wesentlich beeinflussen lässt [80]. Weitere magnetfeldabhängige Untersuchungen nahe des Ladungsneutralitätspunktes zeigen zudem einen gleichermaßen steileren Anstieg des

Längswiderstandes, was in der inhomogenen Verteilung von Elektronen und Löcher gleicher Beweglichkeit begründet ist [81].

Für die hier gemessenen Effekte bedeuten diese Erkenntnisse, dass der lineare Anstieg des Magnetowiderstandes auf eine größere Unordnung in diesem System schließen lässt. Daraus kann man folgern, dass das Topgate neben der modulierenden Wirkung auch die Inhomogenität der Graphenprobe beeinflusst.

Ein besonderes Augenmerk gilt dem Längswiderstand in Abhängigkeit des Magnetfeldes bei symmetrischer Modulation der Ladungsträger bei Gatespannungen von  $V_{bg} = +29V$  und  $V_{tg} = -5V$ . Sie ist in Abbildung 5.10 dargestellt und beinhaltet bei Magnetfeldwerten  $B = \pm 3,1T$  und  $B = \pm 6,2T$  angedeutete Minima, die nicht Quantenhallzuständen zugeordnet werden können.



**Abbildung 5.10:** Probe C: Auftreten weiterer, nicht zuordenbarer Dips im Magnetowiderstand. Bei  $|B| = 3,1T$  und  $|B| = 6,2T$  erscheinen stufenartige Veränderungen, die nicht eindeutig Hallplateaus zugeordnet werden können. Eine Berechnung des Zyklotronradius der Ladungsträger unter den Topgatestreifen lässt Kommensurabilitätseffekte vermuten. Allerdings steht dies im Widerspruch zu der Tatsache, dass die ermittelte mittlere freie Weglänge unter den Streifen um 33% kleiner als die Gitterperiode ist.

Eine mögliche Begründung könnten durch das Topgate bedingte Kommensurabilitätseffekte sein. Um diese These zu überprüfen, kann man gemäß der Formel  $R_c = \frac{\hbar\sqrt{\pi n_T}}{eB}$  Zyklotronradien der Löcher direkt unter den Streifen bestimmen. Ausgehend eines  $d = (40 \pm 2)nm$  dicken  $Al_2O_3$  Topgates mit Dielektrizitätskonstante  $\epsilon_r = (7,5 \pm 0,5)$  werden bei  $V_{tg} = -5V$  gemäß des Plattenkondensatormodells

aus Formel 2.8 insgesamt eine Löcherladungsträgerdichte von  $n_{tg} = 4,84 \cdot 10^{16}\text{m}^{-2}$  induziert. Der relative Fehler beträgt  $\gamma(n_{tg}) = 12\%$ .

Die totale Ladungsträgerdichte  $n_T$  unter den Streifen berechnet sich aus dem obigen Wert  $n_{tg}$  abzüglich der intrinsischen Ladungsträgerdichte  $n_{int}$  und der durch das Backgate induzierten Elektronen. Gemäß Gleichung 2.8 entspricht dieser Wert einer effektiven Backgatespannung von  $V_{bg} = 13,7\text{V} + 29\text{V} = 42,7\text{V}$  und führt zu einer Elektronendichte von  $n_{int} + n_{bg} = 3,07 \cdot 10^{16}\text{m}^{-2}$ . Daraus ergibt sich die totale Löcherladungsträgerdichte unter den Streifen zu  $n_T = 1,77 \cdot 10^{16}\text{m}^{-2}$ .

Setzt man diesen Wert nun in die Formel für den Zyklotronradius, so errechnet sich dieser zu  $R_c = \frac{155,5\text{nm} \cdot T}{B}$ . Für die beobachtbaren Minima des Magnetowiderstandes bei  $B = \pm 3,1\text{T}$  und  $B = \pm 6,2\text{T}$  ergeben sich unter der Berücksichtigung eines relativen Fehlers von 6% Zyklotronradien von  $R_c = (50 \pm 3)\text{nm}$  für  $B = 3,1\text{T}$  und  $R_c = (24,3 \pm 1,5)\text{nm}$  für  $B = 6,2\text{T}$ . Das heißt, dass der Zyklotrondurchmesser genau dem Wert einer Modulationsperiode  $a = 100\text{nm}$  bei  $B = 3,1\text{T}$  beziehungsweise einer halben Modulationsperiode bei  $B = 6,2\text{T}$  entspricht. Daher könnte es sich bei den beobachtbaren Minima im Längswiderstand in der Tat um Kommensurabilitätseffekte handeln.

Allerdings muss man diese Betrachtung mit Vorsicht genießen. Berechnet man die mittlere freie Weglänge unter den Topgatestreifen, so liegt diese für die ermittelte Beweglichkeit von  $\mu = 4200 \frac{\text{cm}^2}{\text{Vs}}$  mit  $l_m = \frac{\hbar\mu}{e} \sqrt{\pi n_T} = (65 \pm 5)\text{nm}$  unter der Streifenperiode von  $a = 100\text{nm}$ . Für das Auftreten von Kommensurabilitätsoszillationen müsste die mittlere freie Weglänge größer als die Gitterperiode sein.

Ob es sich nun bei den auftretenden Dips im Längswiderstand wirklich um Kommensurabilitätsoszillationen handelt, kann nicht mit Sicherheit gesagt werden, obgleich die Berechnung der Zyklotronradien der Ladungsträger diese These stark untermauert. Um diese These zu klären, müsste zum Erfüllen der Bedingung  $l_m > a$  die Beweglichkeit der Graphenprobe deutlich über  $\mu > 15.000 \frac{\text{cm}^2}{\text{Vs}}$  liegen.

## 5.4. Probe D: Laterale Modulation mit Streifen der Periode $a = 100\text{nm}$ und einem $d = 25\text{nm}$ dicken $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Topgatedielektrikum

Um die Modulationseigenschaften zu verstärken bedarf es der Reduktion der Dicke des Topgatedielektrikums. Für eine grundlegende Charakterisierung unipolarer und bipolarer Zonen der Übergitterstruktur wurde auf einem  $90\text{nm}$  dicken  $\text{SiO}_2$ -Substrat eine  $L/W = \frac{2\mu\text{m}}{1\mu\text{m}} = 2$  Hallbar geätzt. Das  $25\text{nm}$  dicke Topgatedielektrikum wurde mit einem einfachen ALD-Prozess gewachsen. Dabei wurde die Probe explizit nicht mit Chloroform vorbehandelt. Die ALD-Temperatur betrug  $T = 120^\circ\text{C}$  und die Spülzeit zwischen den Pulsen dauerte jeweils 35 Sekunden. Der Nachteil dieses einfachen ALD-Rezepts liegt darin, dass die Hysterese in den

Topgatesweeps bis zu  $\Delta V_{tg} = 3,3V$  beträgt. Für die folgenden Betrachtungen werden daher nur die Topgatekurven mit positiver Sweeprate benutzt.

Aus einer Analyse der Ladungsneutralitätspunkte der Back- und Topgatekurven ergibt sich, dass man mit dem Topgate  $\zeta = (2 \pm 0,2)$  mehr Ladungsträger unter den Streifen erzeugen kann. Umgerechnet auf die Topgatehysterese bedeutet dies, dass sich bedingt durch die Fabrikation des Topgatedielektrikums bereits potentielle Störstellen mit einer mittleren Dichte von  $n = \frac{\zeta \epsilon_0 \epsilon_r (SiO_2) \Delta V_{tg}}{ed(SiO_2)} = 1,6 \cdot 10^{12} cm^{-2}$  befinden, die für die Topgatehysterese verantwortlich sind. Diese Dichte liegt eine Größenordnung höher als der typische Wert für Electron-Hole-Puddles.

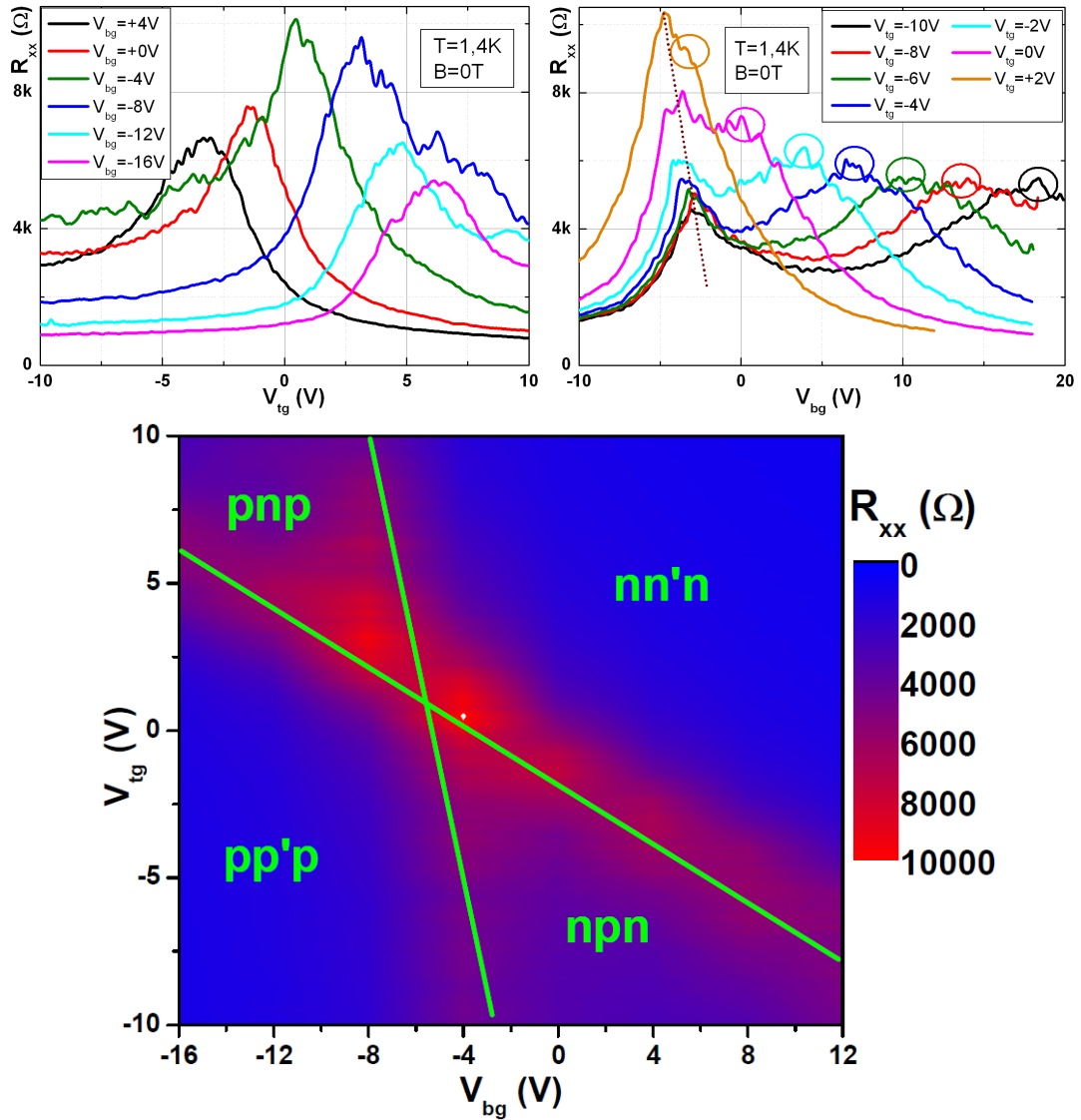
Der Topgatehysterese kann entgegengewirkt werden, indem nur die Messwerte einer Sweeprichtung der Topgatespannung, speziell in diesen Messungen von negativ nach positiv, aufgenommen werden. Die einzelnen Gatekurven (vgl. Abbildung 5.11) zeigen, dass mit dem Topgate eine Modulation in der Probe erreicht wird.

Die Kurven der topgateabhängigen Längswiderstände bei verschiedenen Backgatespannungen zeigen ein asymmetrisches Verhalten. Für  $V_{bg} < -6V$  werden in den nicht-topgegateten Zonen des Graphens Löcher erzeugt. Zeitgleich induzieren Spannungen rechts des Topgate-Ladungsneutralitätspunktes Elektronen unterhalb des Streifens. Es kommt daher zu einem bipolaren Regime, bei dem der Abfall der Widerstandskurve viel geringer als im unipolaren Regime bei Spannungen links des Topgate-Ladungsneutralitätspunktes ist und der Widerstand am Diracpunkt selbst immer kleiner wird, je mehr man mit der Backgatespannung vom Diracpunkt entfernt ist. Analog zu Messungen an einfachen pn-Übergängen (vgl. dazu [77]) ist dies ein Anzeichen für multiples Klein-Tunneln der Ladungsträger an den einzelnen Barrieren des Übergitters. Wird das Backgate zu  $V_{bg} > -6V$ , so verlagert sich die Widerstandsasymmetrie in die andere Gatezone.

Die Zonen der unipolaren und bipolaren Bereiche offenbaren sich am besten in den Backgatesweeps zu verschiedenen Topgatespannungen (vgl. Graph oben rechts in Abbildung 5.11). Die dazugehörigen Kurven im Längswiderstand zeigen zwei Diracpunkte pro Messgraph. Die Diracpunkte, die in Abbildung 5.11 mit einem Kreis markiert sind, können den Zonen unterhalb der Topgatestreifen zugeordnet werden und sind ein Maß für die Effektivität des Topgates. Zusätzlich erscheint ein Diracpunkt, der sich nur wenig mit der angelegten Topgatespannung verändert. Er spiegelt die Ladungsträgerneutralität in den nicht-topgegateten Bereichen der Probe wider und ist in Abbildung 5.11 mit einer braun gepunkteten Linie markiert.

Die Änderung dieses Diracpunktes, der eigentlich immer bei der selben Topgatespannung in den Backgatesweeps erscheinen sollte, macht die Analyse des Streufelds möglich. Unter Annahme einer linearen Verschiebung der Ladungsneutralität nicht-topgegateter Zonen kann die Effektivität der Streufeldeffekte im Vergleich zum Backgate als  $\zeta = 0,28 \pm 0,04$  bestimmt werden. Daraus ergibt sich für die streufeldinduzierten Ladungsträger eine Dichte von  $\frac{n}{V_{tg}} = \frac{\zeta \epsilon_0 \epsilon_r (SiO_2)}{ed(SiO_2)} = 6,7 \cdot 10^{10} cm^{-2} V^{-1}$ .

5.4. PROBE D: LATERALE MODULATION MIT STREIFEN DER PERIODE  $A = 100\text{NM}$  UND EINEM  $D = 25\text{NM}$  DICKEN  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -TOPGATEDIELEKTRIKUM



**Abbildung 5.11:** Probe D: Gateabhängige Widerstandsmessungen bei  $B = 0\text{T}$  und  $T = 1,4\text{K}$ . Die Modulation und die Erzeugung bipolarer Zustände äußern sich einerseits in den Topgatesweeps in Asymmetrien der Widerstandskurven und andererseits durch zwei Diracpunkte in den Backgatesweeps. Hier markieren die Kreise die Ladungsneutralitätspunkte unterhalb der Topgatestreifen und die braun gepunktete Linie veranschaulicht die Diracpunkte außerhalb davon. In der unteren Auftragung werden die verschiedenen Zonen mit unipolaren oder bipolaren Ladungsträgern klar erkennbar.

Der untere Graph in Abbildung 5.11 veranschaulicht die einzelnen Zonen der Ladungsträger. Insbesondere die Wanderung der zwei auftretenden Diracpunkte und der geringere Abfall der Widerstandswerte in den pnp- und npn-Regionen sind in dieser Auftragung sehr gut erkennbar.

Weitere, magnetfeldabhängige Messungen dieser Struktur zeigen keine signifikanten Effekte im Quantenhallregime, welche auf weitere Modulations- oder Übergittereffekte zurückzuführen wären. Dafür können zwei Gründe angegeben werden.

Zum Ersten verursachen die vorher berechneten Störstellen, die für die Topgatehysterese verantwortlich sind, große Inhomogenitäten innerhalb der Graphenprobe. Diese sind ähnlich wie Electron-Hole-Puddles statistisch verteilt und verhindern damit die Formation wohldefinierter Landauzustände.

Zum Zweiten liefert die Berechnung der Beweglichkeit unipolarer Bereiche aus den Backgatekurven stark abweichende Werte. Sie liegt für eine Topgatespannung von  $V_{tg} = +6V$  im Elektronenbereich bei  $\mu = 4600 \frac{cm^2}{Vs}$ . Für  $V_{tg} = +2V$  sinkt die Beweglichkeit um 39% auf  $\mu = 2800 \frac{cm^2}{Vs}$ . Erfahrungsgemäß ist es bei Proben mit Beweglichkeiten unter  $\mu = 3000 \frac{cm^2}{Vs}$  schwierig, das Quantenhallregime mit Magnetfeldern unter 10T zu erreichen.

Zusammenfassend kann man sagen, dass eine Modulation bei einer Periode von  $a = 100nm$  und Dielektrikumsdicke  $d = 25nm$  durchaus erreichbar ist. Es zeigt sich hier außerdem, dass die Herstellung qualitativ hochwertiger Dielektrika von entscheidender Bedeutung für Übergitterproben ist. Eine Behandlung mit Chloroform vor dem ALD-Prozess, wie in Kapitel 3.2.1 erläutert, scheint hierbei unabdingbar zu sein.

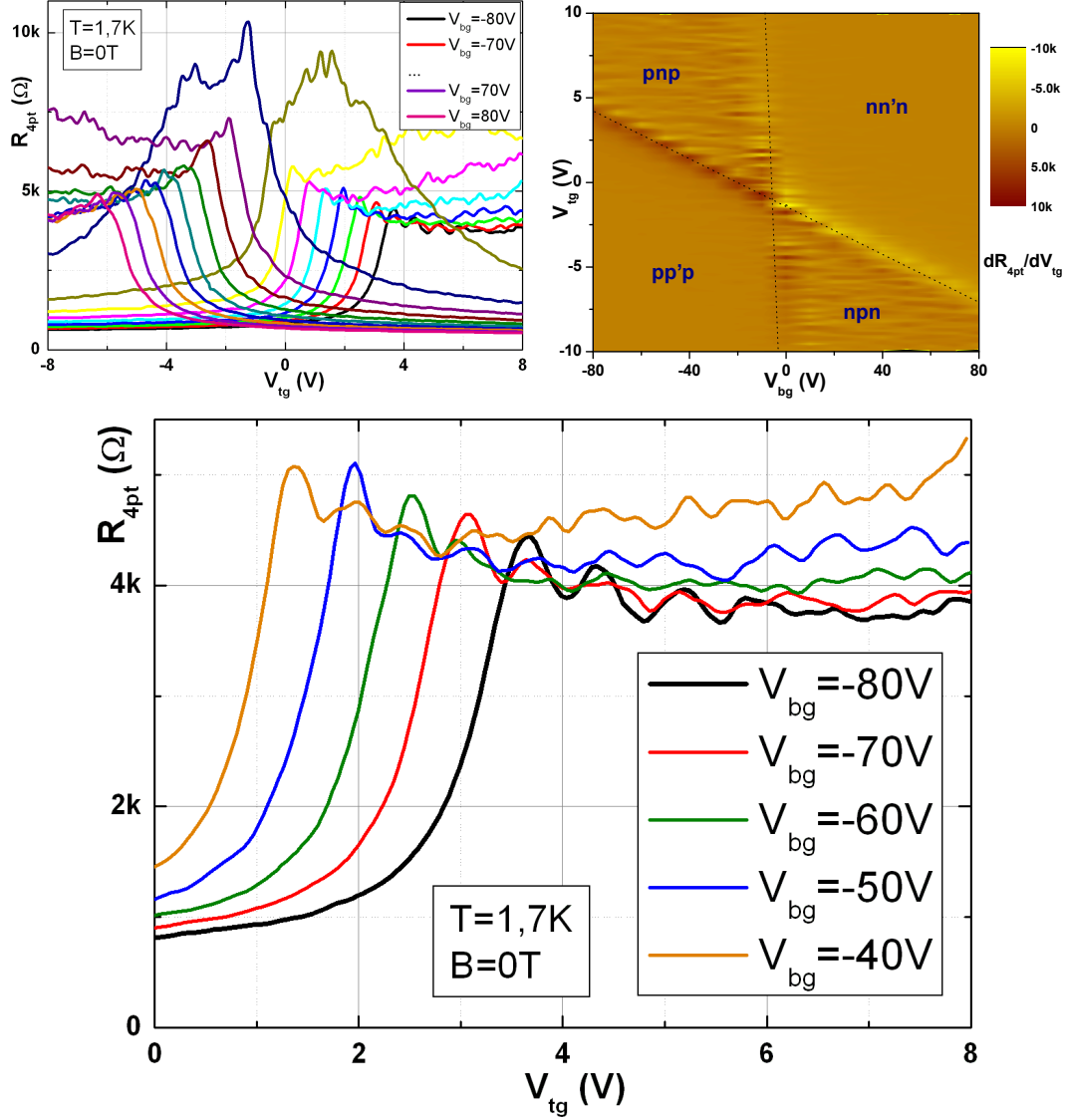
### 5.5. Probe E: Laterale Modulation mit Streifen der Periode $a = 200nm$ und einem $d = 17nm$ dicken $Al_2O_3$ -Topgatedielektrikum

Bei der letzten hier vorgestellten Probe handelt es sich um eine Graphenmonolage auf einem 285nm dicken  $SiO_2$ -Substrat mit Geometriefaktor  $L/W = \frac{2\mu m}{1\mu m} = 2$ . Auf die mit Chloroform gereinigte Probe wurde zunächst bei stickstoffgekühltem Probenhalter ein 1nm Seedlayer aus Aluminium aufgedampft, welcher nach Oxidation eine etwa 2nm dicke  $Al_2O_3$ -Schicht ergibt. Weitere 15nm  $Al_2O_3$  wurden mittels eines Standard-ALD-Prozesses bei 120°C aufgetragen.

Die Periode der Streifen beträgt bei dieser Probe 200nm. Dieser Abstand zweier benachbarter Streifen kann größer als die erreichbaren mittleren freien Weglängen in der Probe angesehen werden, wobei ballistischer Transport über eine Potentialstufe hinweg stattfinden kann.



5.5. PROBE E: LATERALE MODULATION MIT STREIFEN DER PERIODE  $A = 200\text{NM}$  UND EINEM  $D = 17\text{NM}$  DICKEN  $\text{AL}_2\text{O}_3$ -TOPGATEDIELEKTRIKUM



**Abbildung 5.12:** Probe E: Vierpunktwidestände abhängig von Back- und Top-gatespannung bei  $B=0\text{T}$  und  $T=1,7\text{K}$ . Die Asymmetrie der topgateabhängigen Widerstandskurven deuten auf die verschiedenen Zonen und Klein-Tunneln hin (linker oberer Graph). Trägt man die Ableitungen der Widerstandswerte in einem zweidimensionalen Flächenplot auf, so finden sich in den bipolaren Bereichen Anzeichen für Oszillationen (rechter oberer Graph). Am Ausgeprägtesten sind diese Fabry-Pérot-Oszillationen bei hohen Ladungsträgerdichten, welche durch Back-gatespannungen größer als  $|V_{bg}| > 40\text{V}$  erreicht werden können (unterer Graph).

Die Besonderheit dieser Probe besteht in der geringen Anzahl an Störstellen. Der Diracpunkt liegt im Topgate unter Berücksichtigung der Hysterese bei  $V_{tg} = (-1, 0 \pm 0, 3)V$  und im Backgate bei  $V_{bg} = (-4, 5 \pm 1, 3)V$ . Letzter Wert entspricht einer intrinsischen Ladungsträgerdichte von  $n = (3, 4 \pm 1, 0) \cdot 10^{11} \text{cm}^{-2}$ .

Die Extraktion der Beweglichkeit aus einem Backgatesweep bei  $V_{tg} = 0V$  liefert  $\mu = 3170 \frac{\text{cm}^2}{\text{Vs}}$ . Dieses Ergebnis liegt im Rahmen der aus dem Magnetotransport ermittelten Daten des Vierpunktwiderstandes  $R_{4pt}(B = 0) = 6,4 k\Omega$  und der Steigung der Hallgerade  $dR_H/dB = 1175 \Omega/T$ , woraus sich unter Einbezug des Geometriefaktors  $L/W = 2$  die Beweglichkeit zu  $\mu = 3670 \frac{\text{cm}^2}{\text{Vs}}$  berechnet.

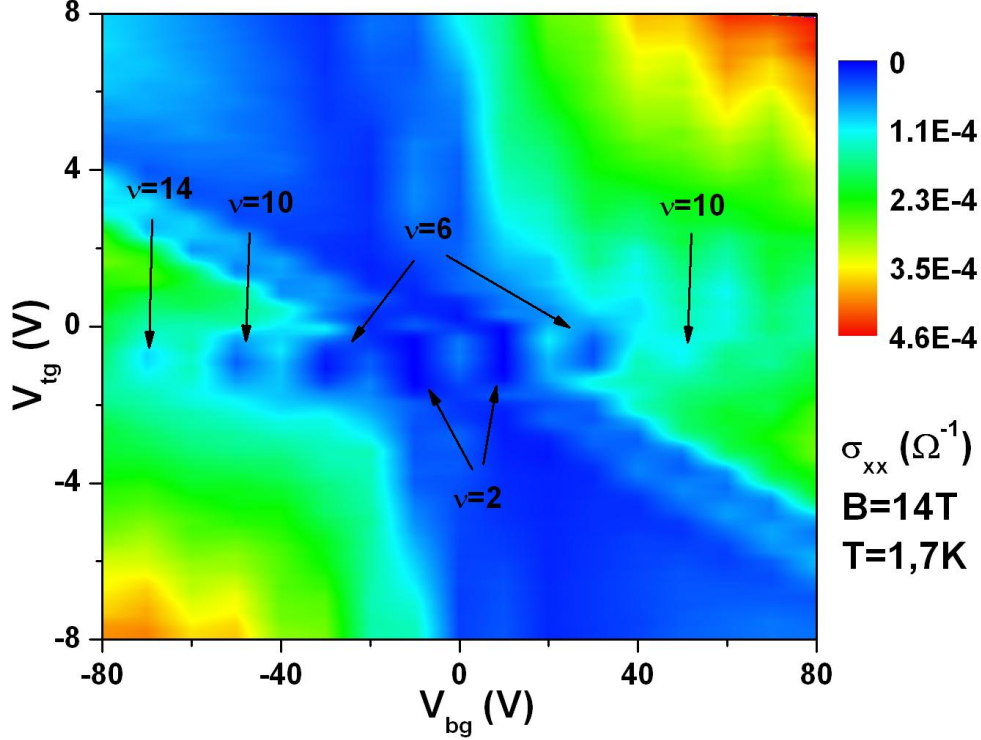
Abbildung 5.12 zeigt die gemessenen Vierpunktwiderstände abhängig von Top- und Backgatespannung bei  $T = 1,7K$  ohne äußeres Magnetfeld. Im linken oberen Bild sind die Kurvenscharen für verschiedene Backgatespannungen gezeigt. Man kann eine klare Asymmetrie erkennen, wobei der Widerstand im jeweils unipolaren Regime viel schneller abfällt und im bipolaren Regime annähernd gleich bleibt. Zudem wird der Gesamtwiderstand am Diracpunkt höher, je näher man mit der Backgatespannung Ladungsneutralität in den nicht topgegateten Bereichen erzeugt.

Eine zweidimensionale Auftragung der Ableitung des Vierpunktwiderstandes nach der Topgatespannung offenbart die unipolaren und bipolaren Transportbereiche der Graphenprobe. Hierbei sticht besonders ins Auge, dass es im bipolaren Bereich zu Oszillationen kommt. Sie treten verstärkt dann auf, wenn mit dem Backgate hohe Ladungsträgerdichten in der Graphenprobe erzeugt werden (vgl. unterer Graph in Abbildung 5.12). Es handelt sich hier um die in Kapitel 2.2.3 vorgestellten Fabry-Pérot-Oszillationen an einzelnen Potentialbarrieren und nicht um einen etwaigen Übergittereffekt. Allerdings ist es in der Tat erstaunlich, diese an einzelnen pnp-Übergängen auftretenden Oszillationen an dieser Probe zu sehen, da bei der Vierpunktmesslänge mit  $L = 2\mu\text{m}$  mindestens zehn Topgatestreifen Barrieren erzeugen. Die Quantenoszillationen treten somit an jedem pnp-Übergang gleichermaßen auf.

Für eine weitere Charakterisierung der Übergitterstruktur wurden Gatesweeps bei  $B = 14T$  im Quantenhallregime gemacht und Vierpunkt- und Hallspannung gemessen. Die Hallwiderstände zeigen interessanterweise nur dann vereinzelt quantisierte Werte, wenn die Modulation mit dem Topgate gering eingestellt wird.

Dieses Verhalten kann gut in einer Auftragung der aus den Längs- und Hallspannungen herausgerechneten Längsleitfähigkeit gegen Back- und Topgatespannung sichtbar gemacht werden (siehe Abbildung 5.13). In Bereichen kleiner Modulation zwischen  $V_{tg} = -2V$  und  $V_{tg} = 0V$  werden entlang der Achse der Backgatespannung Shubnikov-de Haas-Minima erkennbar, die den Füllfaktoren  $\nu = \pm 2, \pm 6, \pm 10, \pm 14$  zugeordnet werden können. Des Weiteren steigt die Leitfähigkeit in den unipolaren Bereichen der Heterostruktur, während sie im bipolaren Bereich bis auf  $2 \cdot 10^{-5} \Omega^{-1}$  sinkt. Im Gegensatz zu Experimenten mit  $a = 100\text{nm}$  breiten Topgatestreifen findet hier keine offensichtliche Mischung von Quantenhallzuständen statt, sondern es scheint im Bereich großer Magnetfelder zu gelten,

dass die durch das Topgate induzierten Ladungsträger eher als Störstellen des breiten, nicht-topgegateten Graphenbereichs fungieren.

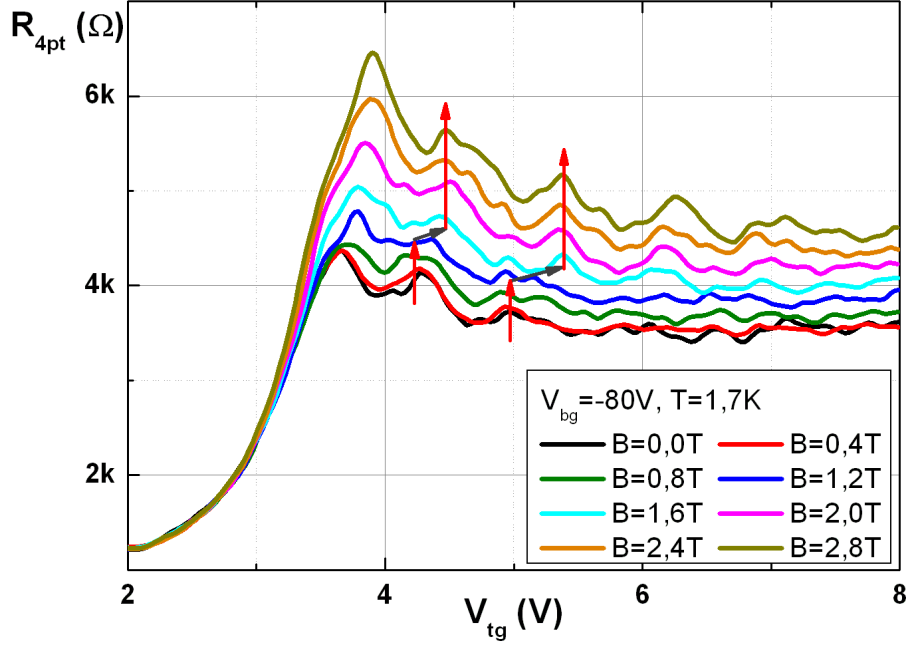


**Abbildung 5.13:** Probe E: Leitfähigkeit abhängig von Top- und Backgatespannung bei  $B = 14\text{T}$  und  $T = 1,7\text{K}$ . Das Quantenhallregime wird nur dann erreicht, wenn die Modulation des Topgates sehr gering ist (zwischen  $V_{tg} = -2\text{V}$  und  $V_{tg} = 0\text{V}$ ). Nur hier werden Shubnikov-de Haas-Minima sichtbar, während die Leitfähigkeit in der bipolaren Zone eine Größenordnung niedriger als in der unipolaren Zone ausfällt. Eine Mischung von Quantenhallzuständen kann nicht beobachtet werden.

Da diese Probe Quantenoszillationen im bipolaren Regime zeigt, wurde außerdem überprüft, ob sich deren Phase bei einem bestimmten Magnetfeld verschiebt. Dazu wurde mit einer Backgatespannung von  $V_{bg} = -80\text{V}$  eine relativ hohe Löcherdichte in der Probe erzeugt, da die Fabry-Pérot-Oszillationen hier am ausgeprägtesten sind.

Abbildung 5.14 zeigt die gemessenen Widerstandsoszillationen abhängig der Topgatespannung für verschiedene Magnetfelder. Der Phasensprung erscheint bei einem Magnetfeld zwischen  $B = 1,2\text{T}$  und  $B = 1,6\text{T}$  und ist im Graph für mindestens die erste und zweite Oszillation eindeutig zu sehen. Im Gegensatz zu den Experimenten, die in Kapitel 2.3.2 vorgestellt wurden (vgl. Abbildung 2.14), handelt es sich bei dieser Probe um ein Graphenübergitter, so dass nicht ausgeschlossen werden kann, dass es sich hier um einen Kommensurabilitätseffekt handelt.

Eine Berechnung des Zyklotronradius (vgl. Kapitel 5.1) im nicht-topgegateten Bereich liefert bei einer Spannung von  $V_{bg} = -80V$  an einem 285nm dicken Backgate aus  $SiO_2$  unter Berücksichtigung des Ladungsneutralitätspunktes im Backgate bei  $V_{DP} = (-4,5 \pm 1,3)V$  den Wert  $R_C = \frac{278 \pm 40}{B} nm \cdot T$ . Speziell für den bei  $B = (1,4 \pm 0,2)T$  auftretenden Phasensprung der Widerstandsoszillationen ergibt sich ein Zyklotronradius der Ladungsträger von  $R_c = (199 \pm 56)nm$ .



**Abbildung 5.14:** Probe E: Phasenverschiebung der Widerstandsoszillationen bei kleinen Magnetfeldern. Bei einem Magnetfeld von etwa  $B = 1,4T$  verschieben sich die Widerstandsoszillationen, was auf Fabry-Pérot-Oszillationen zurückzuführen ist.

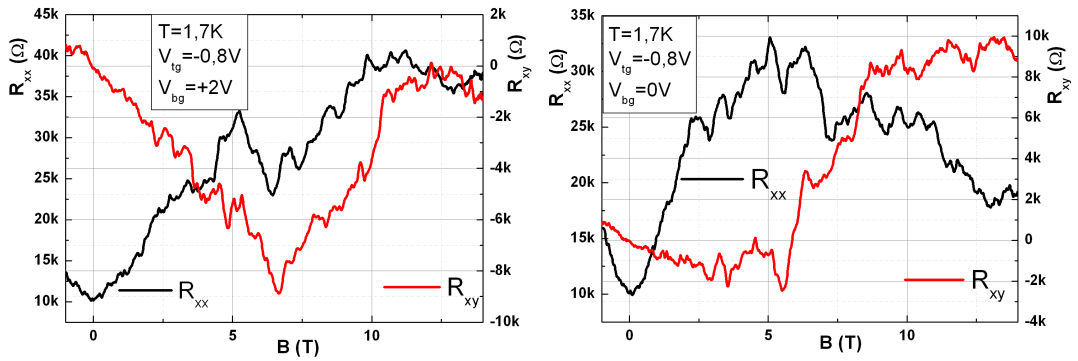
Der Wert des Zyklotronradius beim Phasensprung der Fabry-Pérot-Oszillationen ist also identisch mit der Gitterperiode des Topgates und könnte daher mit Komensurabilitätseffekten begründet sein. Eine exakte Analyse der Lage des Phasenshifts ausgehend einer einzelnen Barriere gestaltet sich als schwierig, da man dazu den in Formel 2.16 vorgestellten Parameter  $\alpha$  der Coulomb-Wechselwirkung einbeziehen müsste. Dieser kann jedoch für ein Gate aus  $SiO_2$  nur schwer abgeschätzt werden.

Die Berechnung der mittleren freien Weglänge aus der aus Gatesweep und Hallmessungen bestimmten Beweglichkeit  $\mu = (3420 \pm 250) \frac{cm^2}{Vs}$  ergibt in den nicht-topgegateten Bereichen einen Wert von  $l_m = (95 \pm 17)nm$ . Sie liegt damit um die Hälfte unter dem Wert des Zyklotronradius. Dies lässt vermuten, dass es sich bei dem Phasensprung wohl doch eher um einen Effekt der Reflexion der Ladungsträger an einzelnen Barrieren handelt. Es soll an dieser Stelle jedoch nicht

ausgeschlossen werden, dass der Phasensprung der Fabry-Pérot-Oszillationen unabhängig von etwaigen Übergittereffekten auftritt.

Eine weitere Besonderheit stellen die Messdaten aus Abbildung 5.15 dar. Hier sind für verschiedene Backgatespannungen bei fixer Modulation mit dem Topgate die Längs- und Hallwiderstände abhängig vom Magnetfeld aufgetragen.

Das Hauptaugenmerk gilt hier dem Hallwiderstand. Dieser sinkt zunächst annähernd linear. Bei einem gewissen Wert des Magnetfelds, nämlich bei  $B = 6,6\text{T}$  (linker Graph in Abbildung 5.15) und  $B = 5,5\text{T}$  (rechter Graph in Abbildung 5.15) ändert er die Richtung. Dies kann kein Effekt sich bildender Landauniveaus sein, da die Längswiderstände bei diesen Magnetfeldstärken keine signifikanten Auffälligkeiten zeigen.



**Abbildung 5.15:** Probe E: Magnetfeldabhängige Widerstandswerte mit Richtungsänderung der Hallgeraden. Eine mögliche, semiklassische Erklärung bietet die Analyse der Zyklotrondurchmesser unterhalb der Topgatebereiche, welche bei diesen Werten für die Top- und Backgatespannung im Bereich der Breite eines einzelnen Streifens inklusive des Streufeldes liegt. Ab einem gewissen Wert des Magnetfelds passt die Zyklotronbahn in diese Zone und die Ladungsträger tragen nicht mehr zur Hallspannung bei.

Analog zur Analyse der Kommensurabilitätseffekte der Probe A (vgl. Kapitel 5.1) berechnet sich die totale Ladungsträgerdichte unterhalb der Topgatestreifen zu  $n_T = n_{tg} + n_{bg} + n_{int}$ . Nimmt man für das Topgate eine Dicke von  $d = 17\text{nm}$  und eine Permittivität  $\epsilon_r = 7,5$  an, werden bei einer Spannung von  $V_{tg} = -0,8\text{V}$  insgesamt  $1,0 \cdot 10^{16}\text{m}^{-2}$  Löcher injiziert. Unter Berücksichtigung der Backgatespannung und der aus dem Backgatediracpunkt bestimmten intrinsischen Ladungsträgerdichte von  $n_{int} = 3,4 \cdot 10^{15}\text{m}^{-2}$  Elektronen errechnet man eine totale Löcherdichte unter den Streifen von  $n_T = 6,7 \cdot 10^{15}\text{m}^{-2}$  für  $V_{bg} = 0\text{V}$  und  $n_T = 5,2 \cdot 10^{15}\text{m}^{-2}$  für  $V_{bg} = +2\text{V}$ . Daraus kann man nun die Zyklotrondurchmesser an dem jeweiligen Punkt der beiden Graphen ermitteln, an denen die Hallgerade ihre Richtung ändert. Die Werte liegen bei  $d_C = 35\text{nm}$  für  $V_{bg} = 0\text{V}$  und  $d_C = 26\text{nm}$  für  $V_{bg} = +2\text{V}$ .

Mit den Werten für den Zyklotrondurchmesser der Ladungsträger unterhalb der Topgatestreifen kann eine Erklärung mit semiklassischen Trajektorien gefunden werden. REM-Aufnahmen der Probe zeigen, dass die Breite eines Streifens 20nm beträgt. Unter Berücksichtigung der FEM-Simulationen des Topgates weitet sich dieser Bereich streufeldbedingt um etwa 50% auf und liegt damit im Bereich der oben errechneten Zyklotrondurchmesser. Wenn das Magnetfeld also einen bestimmten Wert erreicht, so kommt es zu geschlossenen Trajektorien der Ladungsträger unterhalb des Streifens. Diese können als lokalisierte Löcher betrachtet werden und tragen nicht mehr zum Hallwiderstand bei. Dieser ändert somit auch seine Richtung, da in den nicht-topgegateten Bereichen Elektronen vorhanden sind.

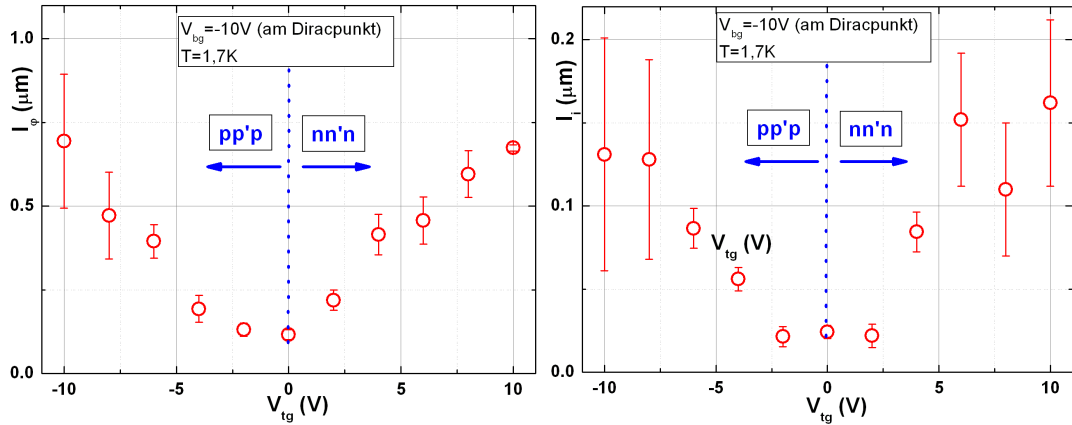
## 5.6. Untersuchungen zu phasenkohärenten Effekten in lateralen Graphenübergittern

In diesem Abschnitt soll nun erläutert werden, wie sich die einzelnen Zonen einer lateral modulierten Graphenstruktur auf die Phasenkohärenzlänge und die Intervalleystreulänge auswirken. Dazu wurden magnetfeldabhängige Widerstandsmessungen durchgeführt und die schwache Lokalisierung sowie die universellen Leitwertfluktuationen untersucht.

Um die Daten der schwachen Lokalisierung mit der Formel 2.37 anfitten zu können, wurde zunächst mit Hilfe des Geometriefaktors der gemessenen Probe die Längsleitfähigkeit berechnet und ein parabolischer Hintergrund abgezogen. Um aus dem verwendeten Fitting-Tool die Werte für die Phasenkohärenzlänge und Intervalleystreulänge mit möglichst geringem Fehler bestimmen zu können, wurden die Messdaten so verschoben, dass der Dip der schwachen Lokalisierung einen Wert von  $G = 0,5 \frac{e^2}{h}$  annimmt. Im Folgenden werden nun Ergebnisse von zwei verschiedenen Proben vorgestellt.

Bei der ersten Probe mit einem Übergitter von  $a = 80nm$  und Dielektrikumsdicke  $d = 28nm$  wurden die magnetfeldabhängigen Messungen für verschiedene Topgatespannungen bei fixer Backgatespannung durchgeführt. Letztere wurde dabei auf  $V_{bg} = -10V$  eingestellt, um in der Probe Ladungsneutralität zu erreichen. Bei den verwendeten Werten für  $a$  und  $d$  kann nun durch die Variation des Topgates erwartet werden, unipolare pp'-p-Bereiche für negative Topgatespannungen und nn'-n-Bereiche für positive Spannungen zu erreichen.

Die Graphen in Abbildung 5.16 zeigen die aus dem Fit ermittelten Phasenkohärenzlängen und Intervalleystreulängen der beiden unipolaren Bereiche der Probe. Beide Längen folgen demselben Muster. Für schwache Modulationen sinken die Werte für Phasenkohärenzlänge und Intervalleystreulänge auf  $l_\varphi \approx 100nm$  bzw.  $l_i \approx 20nm$ , während sie bei erhöhten Modulationsdichten deutlich höhere Werte von etwa  $l_\varphi \approx 700nm$  bzw.  $l_i \approx 140nm$  erreichen.



**Abbildung 5.16:** *Phasenkohärenz- und Intervalleystreulängen in den unipolaren Bereichen. Je geringer die gesamte Ladungsträgerdichte wird, desto mehr Streuprozesse können stattfinden. Dies ist nicht zwangsweise ein Übergittereffekt, sondern liegt darin begründet, dass eine geringere Ladungsdichte Störstellen im Graphen weniger abschirmt.*

Dieser Effekt muss nicht zwangsläufig ein Resultat des Graphenübergitters sein. Vielmehr führen die geringen Ladungsträgerdichten dazu, dass die Abschirmung von Störstellen durch die Elektronen bzw. Löcher geringer wird und es zu mehr phasenbrechenden Streuprozessen im Material kommt. Dies führt zu geringeren Phasenkohärenzlängen und Intervalleystreulängen.

Eine weitere Untersuchung der phasenkohärenten Effekte wurde an Probe E (vgl. Kapitel 5.5) durchgeführt. Die Messungen wurden im Gegensatz zur vorherigen Probe bei einer fixen Topgatespannung von  $V_{tg} = +6V$  durchgeführt, wobei bei unterschiedlichen Backgatespannungen nun das unipolare nn'n- mit dem bipolaren npn-Regime verglichen werden kann.

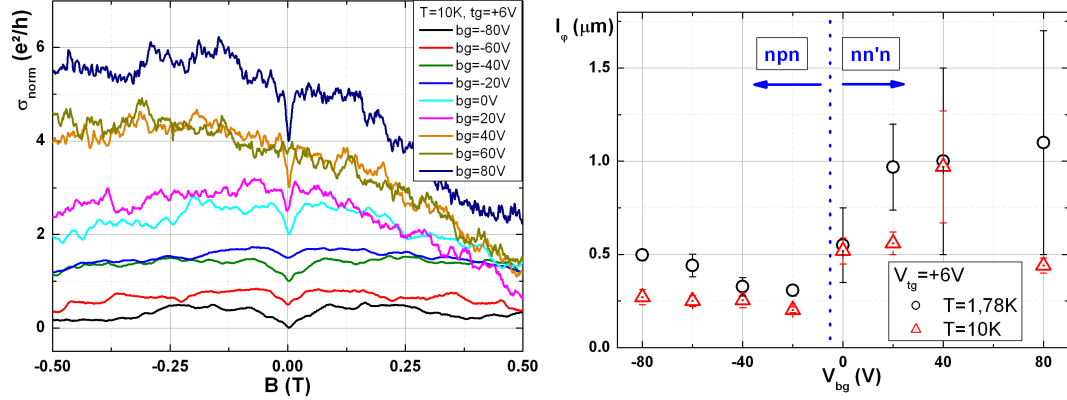
Der linke Graph in Abbildung 5.17 zeigt Leitfähigkeitsmessungen in Abhängigkeit des Magnetfeldes für verschiedene Backgatespannungen bei  $T = 10K$ . Die Graphen wurden dabei so aufgetragen, dass der Abstand zweier benachbarter Kurven  $\delta\sigma = 0,5e^2/h$  beträgt. Dadurch wird sichtbar, dass der Dip der schwachen Lokalisierung im unipolaren Bereich ( $V_{bg} > -4,5V$ ) deutlich spitzer ausfällt als im bipolaren Bereich. Zusätzlich nimmt auch die Stärke der universellen Leitwertfluktuationen zu.

Eine Analyse der Phasenkohärenzlänge aus der schwachen Lokalisierung bringt hervor, dass die Streulängen im bipolaren Bereich deutlich niedriger als im unipolaren Bereich liegen. Hierfür gibt es mehrere Erklärungsansätze.

Im bipolaren Bereich werden an den Grenzflächen der einzelnen pn-Übergänge Zonen mit geringer Ladungsträgerdichte erzeugt. Dies wirkt sich, analog zu obiger Betrachtungsweise für die beiden unipolaren Regime, senkend auf die Phasenkohärenzlänge aus, da Störstellen im Bereich niedriger Dichten nicht mehr so stark abgeschirmt werden, was die Streurrate wesentlich erhöht. Alternativ könnte die



Streurate abhängig von der Grenzfläche sein, so dass es für bipolare Übergänge zu deutlich mehr phasenzerstörenden Streuprozessen kommt als bei unipolaren nn'n- bzw. pp'p-Bereichen.



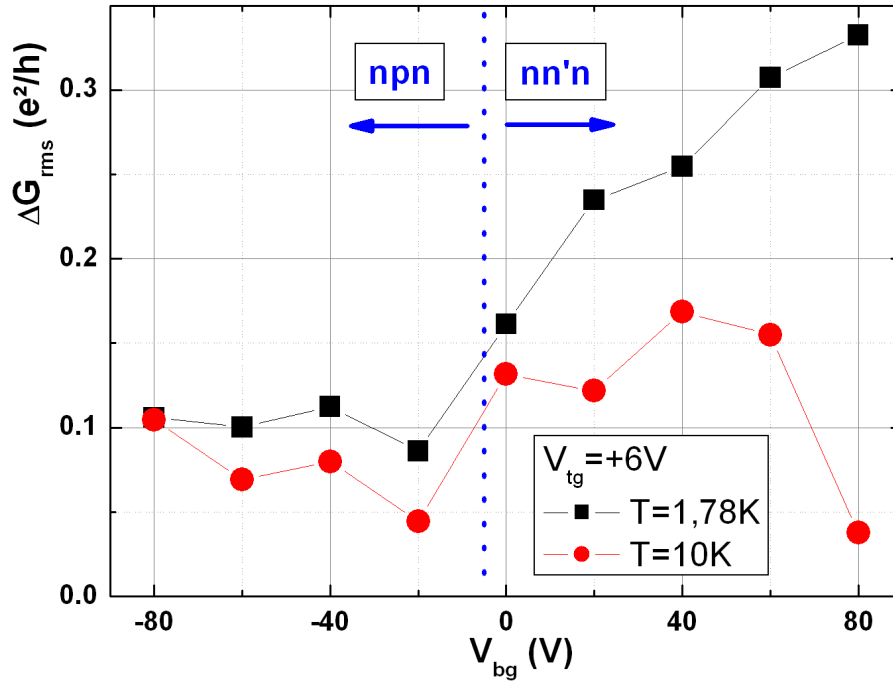
**Abbildung 5.17:** Temperaturabhängige Phasenkohärenzlängen im unipolaren und bipolaren Regime ermittelt aus Messungen der schwachen Lokalisierung. Beim linken Graphen wurden die Leitfähigkeiten so aufgetragen, dass die Abstände der einzelnen Kurven jeweils  $\delta\sigma = 0,5e^2/h$  sind. Sämtliche Graphen im unipolaren Regime (gilt für  $V_{bg} > -4,5V$ ) weisen einen spitzeren Peak der schwachen Lokalisierung bei  $B = 0T$  und deutlich ausgeprägtere universelle Leitwertfluktuationen auf. Eine Analyse durch Extraktion der Phasenkohärenzlänge bestätigt dies im rechten Graphen für zwei verschiedene Temperaturen.  $l_\phi$  nimmt im unipolaren Regime deutlich höhere Werte an.

Allerdings kann nicht ganz ausgeschlossen werden, dass die hier verwendete Formel 2.37 angewendet werden darf, da diese für zweidimensionale Systeme gilt. Betrachtet man nun die ermittelten Phasenkohärenzlängen des unipolaren Regimes, so liegen diese im Bereich von  $l_\phi \approx 1\mu m$  und damit deutlich über der Gitterperiode von  $a = 200nm$  der Probe E. Dies bedeutet insbesondere, dass die Trajektorien über mehrere nn'n-Übergänge verlaufen. Die winkelabhängige Streuung an diesen Übergängen in Graphenstrukturen müsste zusätzlich noch berücksichtigt werden, um quantitativ eindeutige Aussagen treffen zu können.

Unabhängig davon können die universellen Leitwertfluktuationen betrachtet werden, die einen magnetischen Fingerabdruck des Systems widerspiegeln. Eine Analyse mit Hilfe der Autokorrelationsfunktion lieferte keine eindeutigen Ergebnisse. Allerdings konnte  $\Delta G_{rms}$  gemäß Formel 2.38 aus den Daten ermittelt werden. Eine exakte, quantitative Analyse von Streuraten anhand der Standardabweichung der Leitfähigkeit ist für das Übergittersystem leider nicht möglich. Qualitativ kann man dem Graphen in Abbildung 5.18 ablesen, dass  $\Delta G_{rms}$  im unipolaren Regime deutlich höher liegt als im bipolaren Bereich. Dies bestätigt die aus Abbildung 5.17 gewonnen Erkenntnisse, dass die Phasenkohärenzlänge von der Art der



Übergänge einer Graphenheterostruktur abhängig ist. Es kann vermutet werden, dass die Streuung an bipolaren Grenzflächen phasenzerstörend ist.



**Abbildung 5.18:** Temperaturabhängige Analyse der universellen Leitwertfluktuationen im unipolaren und bipolaren Regime. Obwohl aus  $\Delta G_{rms}$  keine quantitative Analyse der Streuprozesse gewonnen werden kann, bestätigt die Standardabweichung der universellen Leitwertfluktuationen das Verhalten der Phasenkohärenzlänge in Abbildung 5.17.

## 5.7. Zusammenfassung der Ergebnisse und Ausblick auf weitere Forschungsmöglichkeiten an Graphenübergitterstrukturen

Die in Kapitel 5 vorgestellten Ergebnisse liefern eine große Anzahl neuer Erkenntnisse über den Ladungstransport in Graphenstrukturen mit strukturierten Topgates. Zuerst kann festgestellt werden, dass sich insbesondere die Dicke des benutzten Topgatedielektrikums und die verwendete Periode unmittelbar auf das Profil der Grenzflächen auswirken. Die erreichbaren Modulationen sind für geringe Topgatedicken am höchsten, wobei eine zu starke Verminderung der Gitterperioden diesem Effekt entgegenwirkt.

Messungen ohne äußeres magnetisches Feld zeigen für unmodulierte Proben die typischen Gatecharakteristika. Bei modulierten Proben hingegen treten insbesondere in den Topgatekurven Asymmetrien im Widerstand auf, was auf multiples

Klein-Tunneln an den Grenzflächen interpretiert werden darf. Das Auftreten zweier Diracpunkte in den Backgatekurven bestätigt die Koexistenz von Löchern und Elektronen unterschiedlicher Dichten in der Übergitterstruktur.

Zudem können bei Topgatesweeps im bipolaren Regime Fabry-Pérot-Oszillationen ausgemacht werden. Diese können auf multiple Reflexion und Transmission an npn-/pnp-Übergängen zurückgeführt werden. Eine durch Kommensurabilitätseffekte begründete Oszillation des Widerstandes kann weitestgehend ausgeschlossen werden.

Die Erkenntnisse aus dem Verhalten der Proben im Quantenhallregime sind vielseitig. Es konnte das Mischen verschiedener Quantenhallzustände beobachtet werden. Dieses Verhalten ist ähnlich dem bei einzelnen Übergängen. Gleichzeitig stellt die Modulation des Systems durch ein Topgate auch einen gewissen Grad an Erhöhung der Unordnung im System dar und führt zu einer Unterdrückung von Quantenhallzuständen.

Auch konnten Kommensurabilitätseffekte gefunden werden. Die Interpretation hierfür muss nach wie vor kritisch betrachtet werden, da die mittlere freie Weglänge der gemessenen Proben weniger als der klassische Zyklotronradius der Ladungsträger beträgt.

Zuletzt zeigen Messungen der schwachen Lokalisierung und universelle Leitwertfluktuationen, dass die Phasenkohärenzlänge im unipolaren Bereich deutlich höher als im bipolaren Bereich liegt. Dies lässt darauf schließen, dass an pn-Grenzflächen in Graphen mehr phasenzerstörende Streuprozesse auftreten, als an nn'- bzw. pp'-Grenzflächen.

Die These, dass es sich bei den auftretenden Widerstandsozillationen um einen Übergittereffekt handelt, konnte jüngst widerlegt werden. Messungen und die dazugehörige, phasenkohärente Tight-Binding-Rechnung für ballistische Ladungsträger an Graphenproben mit einer fixen Anzahl Topgatestreifen sind konsistent mit dem Fabry-Pérot-Modell [82].

Nach wie vor gibt es in Hinblick auf Übergittereffekte noch offene Fragen zu klären. Hierbei ist es zwingend erforderlich, die Qualität der Proben und die damit verbundene Beweglichkeit derart zu erhöhen, dass die mittlere freie Weglänge deutlich über mehrere Gitterperioden hinweg geht. Der größte limitierende Faktor sind die Substrate, in denen die Probe eingebettet ist. Durch das Wachsen des Topgatedielektrikums per ALD kann man die Qualität der Probe zwar optimieren, allerdings scheint es zweifelhaft, ob mit dieser Technik Beweglichkeiten von über  $10.000 \frac{\text{cm}^2}{\text{Vs}}$  verlässlich reproduzierbar erreicht werden.

Eine vielversprechende Möglichkeit zur Erhöhung der Beweglichkeit liegt in der Einkapselung von Graphen in hexagonale Bornitridschichten. Hierbei ergibt sich dann die nächste Herausforderung der Strukturierung eines Topgates. Bornitrid ist ein Isolator und so könnte man die obere Schicht als Topgatedielektrikum verwenden. Da die einzelnen Bornitridflocken nur wenige Nanometer dünn sind, bietet sich deren Verwendung an, da dadurch topgateinduzierte Streufeldeffekte minimiert werden können.

Zudem wird es erforderlich sein, neben sehr dünnen Topgates auch weiterhin an kurzperiodischen Gittern zu arbeiten. Hierfür würde sich die Beschichtung einer eingekapselten Graphenprobe mit PMMA anbieten. Mit hohen Elektronendosen könnten Linien belichtet und eingebrannt werden. Die nicht belichteten Stellen können dann mit Aceton gelöst werden und die festgebrannten Streifen bleiben als strukturierendes Element auf dem mit Bornitrid bedeckten Graphen. Durch flächendeckendes Aufdampfen eines Metalls und Anlegen einer Spannung könnte somit eine kurzperiodische Modulation von geschätzt 30nm erreicht werden und man könnte damit die für Übergittereffekte notwendige Bedingung erfüllen, genügend große mittlere freie Weglängen in Graphen zu erreichen.



## 6. Grundlagen des Spintransports

In diesem Kapitel werden die grundlegenden Effekte des Spintransports in Hinblick auf die Messungen zum Spin-Hall-Effekt in Graphenstrukturen erläutert. Nach der Einführung der Beschreibung des Spintransports mittels des Zwei-Kanal-Modells nach Mott, wird auf das conductivity mismatch problem eingegangen und die Notwendigkeit von Tunnelbarrieren zur Spininjektion erläutert. Weiterhin werden Spin-Ventil und Spinpräzessionstheorien vorgestellt.

Zudem werden in diesem Abschnitt die Grundlagen des Spin-Hall-Effekts beschrieben. Abschließend werden noch Experimente zur Detektion des Spin-Hall-Effekts in Graphen vorgestellt und diskutiert.

### 6.1. Spintransportphänomene

#### 6.1.1. Spintransport in Ferromagneten und an Grenzflächen

Die Beschreibung eines spinpolarisierten Stroms durch einen Ferromagneten geschieht mit Hilfe des Zwei-Kanal-Modells nach Mott [83]. Ihm liegt zu Grunde, dass die Streuprozesse in einem diffusiven Material die Spinorientierung der Ladungsträger weitestgehend erhalten. Dadurch mischen sich die beiden Spinarten innerhalb des Ferromagneten nicht und die Leitfähigkeiten in den spinpolarisierten Kanälen  $\sigma_{\uparrow,\downarrow}$  können unabhängig von der Gesamtleitfähigkeit wie folgt geschrieben werden:

$$\sigma_{\uparrow} = N_{\uparrow} e^2 D_{\uparrow} \text{ und } \sigma_{\downarrow} = N_{\downarrow} e^2 D_{\downarrow} . \quad (6.1)$$

Hierbei bezeichnet  $N_{\uparrow,\downarrow}$  die spinabhängige Zustandsdichte des Ferromagneten bei der Fermienergie  $E_F$  und  $D_{\uparrow,\downarrow}$  die dazugehörigen, spinabhängigen Diffusionskonstanten. Letztere hängen über  $D_{\uparrow,\downarrow} = \frac{1}{3} v_{F\uparrow,\downarrow} l_{\uparrow,\downarrow}$  direkt mit den jeweiligen Fermigeschwindigkeiten  $v_{F\uparrow,\downarrow}$  und den mittleren freien Weglängen  $l_{\uparrow,\downarrow}$  zusammen.

Die in Gleichung 6.1 eingeführten, spinabhängigen Leitfähigkeiten haben zur Folge, dass die Stromdichten  $\vec{j}_{\uparrow,\downarrow}$  in einem Ferromagneten unterschiedliche Werte aufweisen. Gemäß des Ohmschen Gesetzes  $\vec{j} = \sigma \vec{E}$  gelten mit der Einführung des elektrochemischen Potentials für die einzelnen Kanäle  $\mu_{\uparrow,\downarrow}$  im eindimensionalen Fall  $j_{\uparrow,\downarrow} = \frac{\sigma_{\uparrow,\downarrow}}{e} \frac{\partial \mu_{\uparrow,\downarrow}}{\partial x}$ .

Die gesamte Stromdichte im Ferromagneten setzt sich folglich aus der Summe der beiden Spinkanäle  $j = j_{\uparrow} + j_{\downarrow}$  zusammen. Der Spinstrom selbst ist die Differenz der beiden Stromdichten  $j = j_{\uparrow} - j_{\downarrow}$ . Dies erlaubt die Einführung der Spinpolarisation  $P_{FM}$  in einem Ferromagneten gemäß

$$P_{FM} = \frac{j_{\uparrow} - j_{\downarrow}}{j_{\uparrow} + j_{\downarrow}} = \frac{\sigma_{\uparrow} - \sigma_{\downarrow}}{\sigma_{\downarrow} + \sigma_{\uparrow}}. \quad (6.2)$$

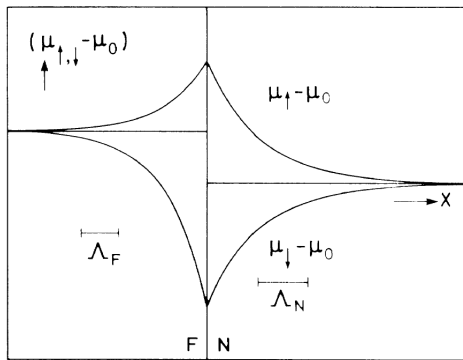
Um Spininjektion und -akkumulation in einem Halbleiter mittels eines Ferromagneten beschreiben zu können, bedarf es einer Erweiterung der Mott'schen Zweikanaltheorie. Ein einfaches Objekt hierfür bildet der Übergang von einem ferromagnetischen zu einem nichtferromagnetischen Metall.

Unter der Annahme, dass die Streurrate ohne Spinumklappprozesse viel größer ist als die Spinumklapprate selbst, kann mit der Bedingung der Stetigkeit der beiden elektrochemischen Potentiale  $\mu_{\uparrow,\downarrow}$  eine Formel für den Widerstand der Grenzfläche  $R_b$  zwischen den beiden Schichten gefunden werden [84]:

$$R_b = \frac{\Delta\mu}{ej} = \frac{(2\alpha_F - 1)^2 (\sigma_N^{-1} \lambda_N) (\sigma_F^{-1} \lambda_F)}{(\sigma_F^{-1} \lambda_F) + 4\alpha_F (1 - \alpha_F) (\sigma_N^{-1} \lambda_N)}. \quad (6.3)$$

Hierbei bezeichnen  $\sigma_{F,N}$  und  $\lambda_{F,N}$  Leitfähigkeit und Spinrelaxationslänge im Ferromagneten (F) bzw. im Nichtferromagneten (N). Der Parameter  $\alpha_F$  ist hier gleichbedeutend mit der Spinpolarisation  $P_{FM}$  aus Gleichung 6.2.

$\Delta\mu = \mu_F(x=0) - \mu_N(x=0)$  ist die Differenz der elektrochemischen Potentiale an der Grenzfläche. Sie führt im Wesentlichen zu einer Aufspaltung der dazugehörigen, elektrochemischen Potentiale  $\mu_{\uparrow,\downarrow}$  an der Grenzfläche (vgl. Abbildung 6.1).



**Abbildung 6.1:** Abhängigkeit der elektrochemischen Potentiale im Zweikanalmodell an einer F/N-Grenzfläche. Das Ungleichgewicht ist dort am Größten, wo sich Ferromagnet und Nichtferromagnet treffen. Grafik aus [84].

Es stellt sich nun zwangsläufig die Frage nach der Effizienz der Spininjektion und -detektion in einem Halbleiter durch ferromagnetische Kontakte. Grundlage einer theoretischen Betrachtung hierfür bildet ein F/N/F-Übergang im Zweikanalmodell. Für parallele Magnetisierung der Ferromagneten und unter Berücksichtigung der Erhaltung und Kontinuität der Stromdichten  $j_{\uparrow,\downarrow}$  an den Grenzflächen

gilt für die Spinpolarisation  $\alpha$  innerhalb eines zweidimensionalen, diffusiven Systems [85]:

$$\alpha = \beta \frac{\lambda_F \sigma_N}{\sigma_F x_0} \frac{2}{\left(2 \frac{\lambda_F \sigma_N}{x_0 \sigma_F} + 1\right) - \beta^2} . \quad (6.4)$$

Dabei bezeichnet  $x_0$  die Länge des Halbleiters zwischen den beiden Ferromagneten und  $\beta \equiv P_{FM}$  die Spinpolarisation in den Ferromagneten selbst. Aus Formel 6.4 ist ersichtlich, dass insbesondere das Verhältnis  $\frac{\lambda_F \sigma_N}{\sigma_F x_0}$  entscheidend für die Spinpolarisation ist. Da die Leitfähigkeit im Halbleiter deutlich geringer als im Metall ist, spricht man bei der daraus resultierenden Verringerung der Spinpolarisation vom conductivity mismatch problem.

Weiterhin wird  $\alpha$  aus Gleichung 6.4 nur in den Grenzfällen dünner Halbleiterschichten ( $x_0 \rightarrow 0$ ) und großer Spinrelaxationslängen im Ferromagneten ( $\lambda_F \rightarrow \infty$ ) maximal. Nimmt man typische Größen in den gängig verwendeten Proben zur Spininjektion an, so erreicht die Spinpolarisation bei  $\beta = 60\%$ ,  $x_0 = 1\mu m$ ,  $\lambda_F = 10nm$  und  $\sigma_F = 10^4 \sigma_N$  nur einen Wert von  $\alpha \approx 0,002\%$  [85]. Daher sind transparente Kontakte zum Erreichen einer hohen Spininjektionseffizienz nur bedingt geeignet.

Das Problem der geringen Spinpolarisation kann umgangen werden, wenn zwischen dem Ferromagneten und dem Halbleiter ein Grenzflächenwiderstand eingeführt wird. Grundlage zur Berechnung bildet wiederum das Zweikanalmodell und die Stetigkeits- und Kontinuitätsbedingungen der relevanten Größen an den Grenzflächen zwischen Ferromagnet und Nichtferromagnet, welche für die Spinpolarisation im Halbleiter die Formel [86]

$$\alpha = \frac{\beta r_F + \gamma r_b^*}{r_F + r_N + r_b^*} \quad (6.5)$$

zur Folge hat.  $\beta$  und  $\gamma$  bezeichnen die Spinpolarisationen im Ferromagneten und in der Grenzfläche,  $r_b^*$  den Widerstand der Grenzfläche und  $r_{F,N} = \rho_{F,N}^* \cdot l_{sf}^{F,N}$  das Produkt des spezifischen Widerstands  $\rho^*$  und der Spindiffusionslänge  $l_{sf}$  in der jeweiligen Schicht. Die Definition der Größe  $\gamma$  geschieht dabei analog zu  $\beta \equiv P_{FM}$  aus Gleichung 6.2.

Aus Gleichung 6.5 ist leicht ableitbar, dass ohne einen Grenzflächenwiderstand ( $r_b^* \rightarrow 0$ ) das Verhältnis von  $r_N/r_F$  die Spinpolarisation bestimmt. Speziell für den gängigen Fall, dass  $r_N$  sehr viel größer als  $r_F$  wird, führt dies zu dem bereits erwähnten conductivity mismatch problem und einer sehr geringen Spinpolarisation.

Andersherum hängt diese für den Grenzfall  $r_b^* \gg r_N, r_F$  im Wesentlichen von dem Parameter  $\gamma$  der Grenzfläche ab und es gilt  $\alpha = \gamma$  für  $r_b^* \rightarrow \infty$ . Im Experiment ist es für das Erreichen hoher Spinakkumulation in einem Halbleiter daher wichtig, einen zusätzlichen Widerstand zwischen dem Ferromagneten und dem Nichtferromagneten einzubauen. Speziell in dieser Arbeit wurde für die Untersuchung des

Spin-Hall-Effekts eine Tunnelbarriere aus Aluminiumoxid verwendet. Aber auch Schottkybarrieren oder Esaki-Tunneldioden könnten prinzipiell der Steigerung der Spinpolarisation dienen [87] [88].

### 6.1.2. Spin-Ventil-Messungen und Spinpräzession in nicht-lokaler Geometrie

In Kapitel 6.1.1 wurde insbesondere auf die Spinakkumulation bei Übergängen zwischen Ferromagneten und Nichtferromagneten eingegangen. Für das Experiment stellt sich nun die Frage, wie ein Spinstrom am besten detektiert werden kann.

Prinzipiell wäre eine direkte Zweipunktmessung an einem F/N/F-Übergang möglich. Allerdings fließen hier Ladungs- und Spinstrom über den gesamten Übergang. Es kann damit nicht ausgeschlossen werden, dass andere physikalische Effekte, wie zum Beispiel der anisotrope Magnetowiderstand (AMR) im Ferromagneten, das Spinsignal überlagern.

Eine Alternative zu der lokalen Messung bietet eine nicht-lokale Probengeometrie, in der der eigentliche Ladungsstrompfad vom Kreis für den Spinstrom getrennt ist. Abbildung 6.2 zeigt den Querschnitt einer typischen Graphenprobe, wie sie auch für die Messungen in Kapitel 7 verwendet wird. Auf exfoliertem Graphen werden lokale Tunnelbarrieren aus Aluminiumoxid aufgebracht und darauf befinden sich zwei unterschiedlich breite, ferromagnetische Streifen. An den Probenenden werden jeweils noch zwei nichtferromagnetische Kontakte angebracht.

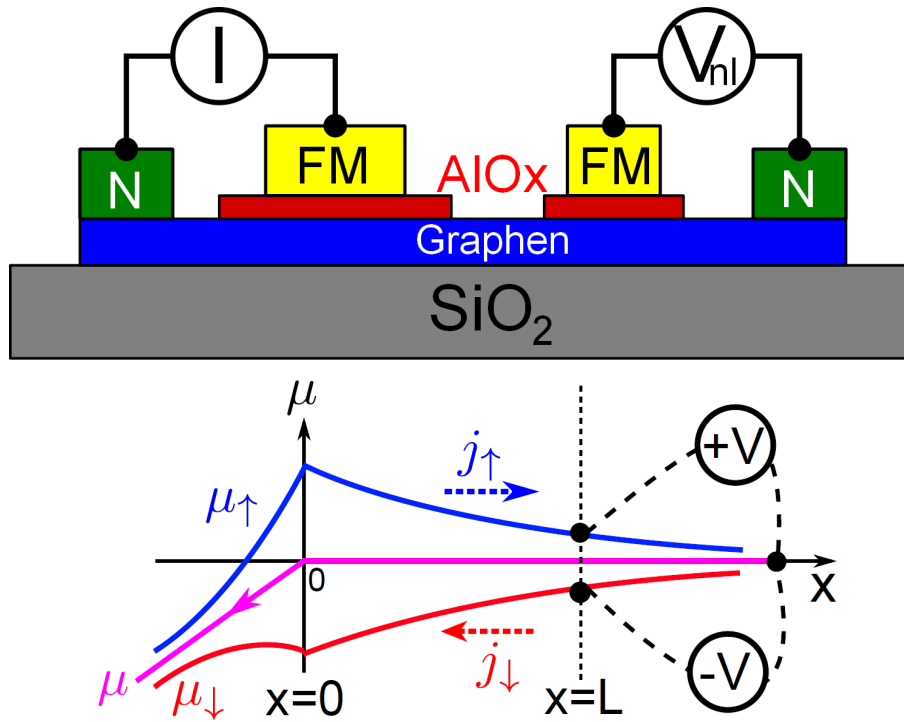
Der Strompfad befindet sich in der linken Hälfte der Struktur, während die nicht-lokale Messung des diffusiven Spinstroms mit Hilfe der anderen beiden Kontakte vorgenommen wird. Betrachtet man den generellen Verlauf der chemischen Potentiale beider Spinkanäle, wenn die Ferromagneten parallel bzw. antiparallel magnetisiert sind (vgl. untere Graphen in Abbildung 6.2), so erwartet man eine Änderung des Spannungsabfalls, wenn einer der beiden ferromagnetischen Streifen seine Magnetisierung um  $180^\circ$  dreht.

Eine theoretische Analyse des zu erwartenden Spinsignals anhand der chemischen Potentiale in der nicht-lokalen Geometrie unter Einbezug der Kontinuität des Stromes liefert [89]:

$$R_{nl} = \frac{V_{nl}}{I} = \pm 2R_N e^{-L/\lambda_N} \prod_{i=1}^2 \left( \frac{P_J \frac{R_i}{R_N}}{1 - P_J^2} + \frac{p_F \frac{R_F}{R_N}}{1 - p_F^2} \right) \times \left[ \prod_{i=1}^2 \left( 1 + \frac{2 \frac{R_i}{R_N}}{1 - P_J^2} + \frac{2 \frac{R_F}{R_N}}{1 - p_F^2} \right) - e^{-2L/\lambda_N} \right]^{-1}. \quad (6.6)$$

Das „+“-Zeichen in Gleichung 6.6 gilt dabei für die parallele Streifenmagnetisierung und das „-“-Zeichen für eine antiparallele Konfiguration.  $R_N$ ,  $R_F$  und





**Abbildung 6.2:** Nicht-lokale Spin-Ventil-Geometrie und das dazugehörige Bild der chemischen Potentiale der Spinkanäle. Auf exfoliertem Graphen auf einem  $\text{SiO}_2$ -Substrat werden lokale Tunnelbarrieren aus Aluminiumoxid aufgebracht. Darauf befinden sich ferromagnetische Streifen unterschiedlicher Dicke. Der Spannungsabfall wird nicht-lokal und damit unabhängig vom Strompfad gemessen. Das untere Bild zeigt den Verlauf der spinabhängigen, chemischen Potentiale. Durch die Differenz entsteht bei  $x = L$  ein detektierbarer Spannungsabfall. Untere Graphik aus [91].

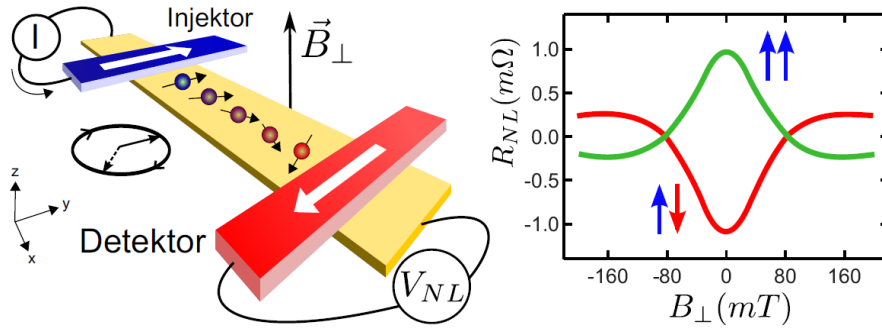
$R_i$  stehen für die Widerstände der Ferromagneten, des Nichtferromagneten (z. B. Graphen) und die der beiden Grenzschichten. Zusätzlich bezeichnet  $P_j$  den Spininjektionskoeffizienten der Grenzfläche,  $p_F$  die Spinpolarisation im Ferromagneten,  $L$  den mittleren Abstand der beiden ferromagnetischen Kontakte und  $\lambda_N$  die Spindiffusionslänge im Nichtferromagneten.

Das eigentliche Widerstandssignal besteht aus der Differenz  $R_s = 2|R_{nl}|$  der beiden Magnetisierungen aus Gleichung 6.6. Falls die beiden ferromagnetischen Kontakte transparent sind ( $R_1, R_2 \ll R_F$ ), so gilt für das Spinsignal eine quadratische Abhängigkeit  $R_s \sim \left(\frac{R_F}{R_N}\right)^2$ . Ist nur einer der Kontakte transparent und der anderen ein Tunnelkontakt (z.B.  $R_1 \ll R_F \ll R_N \ll R_2$ ), so ist die Abhängigkeit immer noch linear zum Widerstandsverhältnis  $R_s \sim \frac{R_F}{R_N}$  [89]. Dies spiegelt wiederum das conductivity mismatch problem wider, bei dem das Spinsignal verschwindend gering wird, wenn der Grenzflächenwiderstand endlich wird.

Sind Ferromagnet und Nichtferromagnet dagegen beide durch einen Tunnelkontakt verbunden ( $R_1, R_2 \gg R_N$ ), so vereinfacht sich Gleichung 6.6 zu [89] [90]

$$R_S = P_J^2 R_N e^{-L/\lambda_N} = \frac{1}{\sigma} \frac{P_J^2 \lambda_N}{W} e^{-L/\lambda_N} . \quad (6.7)$$

Das Widerstandssignal hängt also nur noch von der Probengeometrie, bestimmt durch Breite  $W$  und Länge  $L$ , der Spindiffusionslänge im Nichtferromagneten  $\lambda_N$  sowie dessen Leitfähigkeit  $\sigma$  und der Spininjektionseffizienz  $P_J$  der Tunnelbarriere ab. Mit diesen Spin-Ventil-Messungen können letztendlich bei bekannter Probengeometrie, -leitfähigkeit und Spindiffusionslänge Rückschlüsse auf die Spininjektionseffizienz und damit die Qualität der Tunnelbarriere gezogen werden.



**Abbildung 6.3:** Spinpräzession und Hanlekurven in nicht-lokaler Messanordnung. Ein senkrecht zu der Probe stehendes Magnetfeld lässt die injizierten Spins präzedieren. Rechts sieht man das typische Signal einer nicht-lokalen Messung des Widerstands abhängig vom angelegten Magnetfeld. Die sogenannten Hanlekurven zeigen einen charakteristischen Dip bei  $B = 0\text{ T}$  je nach paralleler oder antiparalleler Ausrichtung der Ferromagneten. Graphik aus [91].

Die nicht-lokale Geometrie bietet noch eine weitere Messoption, welche in Abbildung 6.3 dargestellt ist. Wird senkrecht zur Magnetisierung der Ferromagneten ein zusätzliches  $\vec{B}$ -Feld angelegt, so beginnen die Spins mit der Larmorfrequenz  $\vec{\omega}_L = \frac{g\mu_B \vec{B}}{\hbar}$  zu präzedieren, wobei  $g$  den Landé-Faktor und  $\mu_B$  das Bohr'sche Magneton beschreiben. Betrachtet man neben der Präzession zusätzlich noch den Drift und die Diffusion der Spins, so errechnet sich die Höhe des Widerstandssignals einer Hanle-Messung in Graphen durch Integration über alle Diffusionszeiten gemäß [92] [93] [87]

$$R_s = \pm \frac{1}{2} P_1 P_2 \frac{\lambda_G}{\sigma_G W} \int_0^\infty \frac{1}{\sqrt{4\pi D_s t}} \exp\left(-\frac{L^2}{4D_s t}\right) \cos(\omega_L t) \exp\left(-\frac{t}{\tau_s}\right) dt. \quad (6.8)$$

Im einzelnen sind  $P_{1,2}$  die Spininjektionseffizienzen von Injektor und Detektor,  $\lambda_G$  und  $\sigma_G$  Spindiffusionslänge und Leitfähigkeit der Graphenschicht,  $D_s$  die Spindiffusionskonstante und  $\tau_s$  die Spinrelaxationszeit, wobei  $\lambda_G = \sqrt{D_s \tau_s}$  gilt. „+“- und „-“-Zeichen repräsentieren parallele und antiparallele Konfigurationen der ferromagnetischen Kontakte. Der Vorfaktor  $\frac{1}{2}$  zeigt, dass sich nur die Hälfte der injizierten Spins zum Detektor bewegt.

## 6.2. Der Spin-Hall-Effekt

### 6.2.1. Phänomenologische Grundlagen zum Spin-Hall-Effekt

Beim Spin-Hall-Effekt akkumulieren die Spins mit unterschiedlichen Richtungen an den Rändern eines stromdurchflossenen Leiters. Ursächlich hierfür ist die Spin-Bahn-Kopplung, welche einen asymmetrischen Transport der Spins senkrecht zur Stromrichtung zur Folge hat. Der Name Spin-Hall-Effekt impliziert jedoch nicht, dass für dessen Auftreten ein äußeres Magnetfeld nötig wäre. Es bildet sich auch keine messbare Hallspannung aus, da die Anzahl der Ladungsträger, die die jeweiligen Spinpolarisationen tragen, an beiden Rändern der Probe gleich groß sind. Dies wurde zum ersten Mal 1971 von D'yakonov und Perel vorhergesagt [94].

Generell unterscheidet man zwischen dem intrinsischen und dem extrinsischen Spin-Hall-Effekt. Während im intrinsischen Fall die Spin-Bahn-Kopplung ursächlich für die spinabhängigen Streuprozesse ist, werden diese Streuprozesse im extrinsischen Fall durch Störpotentiale beeinflusst.

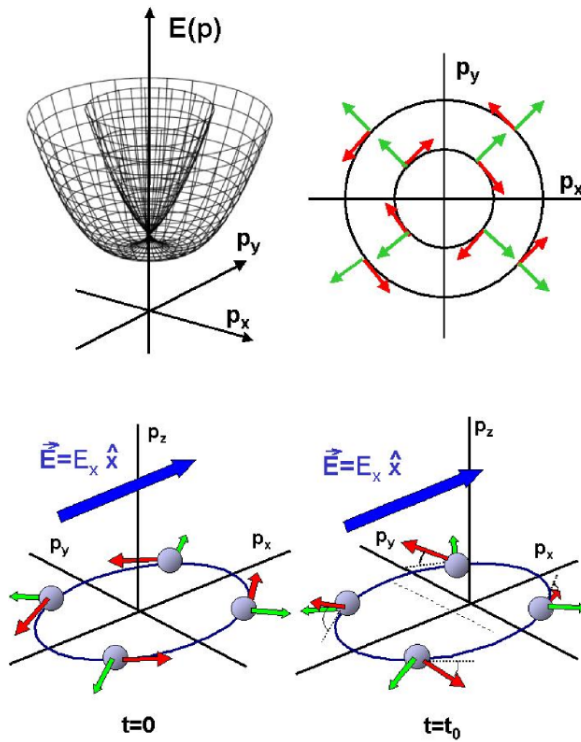
Zunächst soll auf den intrinsischen Spin-Hall-Effekt in zweidimensionalen Systemen näher eingegangen werden. Unter der Annahme nicht wechselwirkender Ladungsträger lässt sich der Einteilchenhamiltonian der Spin-Bahn-Wechselwirkung schreiben als [95]

$$H = \frac{p^2}{2m} + \frac{\alpha}{\hbar}(p_x \sigma^y - p_y \sigma^x) + \frac{\beta}{\hbar}(p_y \sigma^y - p_x \sigma^x) . \quad (6.9)$$

Hier bezeichnen  $\sigma_{x,y}$  die Paulimatrizen. Der rechte Term in Gleichung 6.9 stellt den Dresselhaus-Term und der mittlere Term den Rashba-Term der Spin-Bahn-Wechselwirkung dar. Insbesondere ist der Rashbabeitrag von besonderem Interesse, da dessen Stärke  $\alpha$  zum Beispiel durch das Anlegen einer Gatespannung beeinflusst werden kann [96].

Abbildung 6.4 veranschaulicht die Entstehung eines spinorientierten Stroms eines zweidimensionalen Systems in einem Rashbafeld. Dabei kommt es zunächst zu einer Aufspaltung der Bänder im Impulsraum. Die grünen Pfeile symbolisieren den Impuls der Ladungsträger und die roten Pfeile die senkrecht darauf stehenden Eigenspinoren innerhalb einer kreisrunden Fermifläche. Findet nun ein Stromfluss durch das Anlegen eines elektrischen Feldes  $\vec{E} = E_x \hat{x}$  zum Zeitpunkt  $t = 0$  statt,

so verschiebt sich die Fermifläche zum Zeitpunkt  $t = t_0$  entlang der  $\hat{x}$ -Richtung. Wenn sich die Elektronen durch den Impulsraum bewegen, so wirkt ein effektives Drehmoment, welches die Spins für  $p_y > 0$  nach oben und für  $p_y < 0$  nach unten kippt. Dadurch entsteht ein spinpolarisierter Strom senkrecht zum angelegten elektrischen Feld.

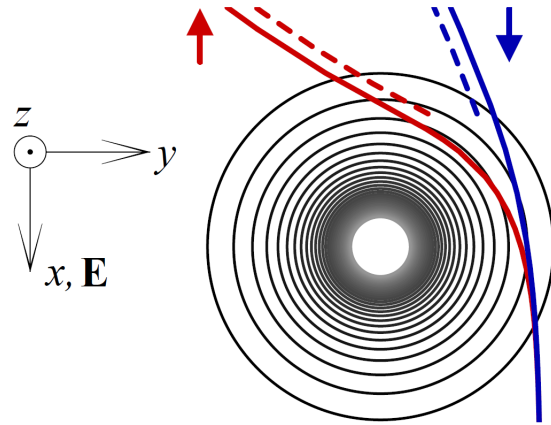


**Abbildung 6.4:** Modell des intrinsischen Spin-Hall-Effekts in einem Rashbafeld. Beim Anlegen eines elektrischen Feldes verschiebt sich die Fermioberfläche derart, dass die Bewegung der Ladungsträger mit Impuls  $p$  (grüne Pfeile) eine Rotation des Spins (rote Pfeile) zur Folge hat. Dabei kippen diese Spins für  $p_y > 0$  und  $p_y < 0$  in unterschiedliche Richtungen, was in einen Spin-strom resultiert. Grafik aus [97].

Im Gegensatz zu dem oben beschriebenen Mechanismus können auch Störpotentiale die Spin-Bahn-Wechselwirkung lokal beeinflussen. Bewegen sich Ladungsträger durch ein zweidimensionales System an einer geladenen Störstelle vorbei, dann führt diese extrinsische Spin-Bahn-Kopplung dazu, dass auf die Ladungsträger ein effektives Magnetfeld wirkt. Der Streuwinkel ist dabei von der Spinorientierung abhängig und führt, ähnlich wie beim intrinsischen Spin-Hall-Effekt, zu einer Spinpolarisation.

Abbildung 6.5 zeigt die spinabhängige Streuung an einem für die Ladungsträgerart attraktiven Störpotential. Diese ist für die beiden Spinrichtungen asymmetrisch. Zusätzlich sind hier zwei verschiedene Mechanismen skizziert. Die durchgezogenen Linien in Abbildung 6.5 zeigen die Mott'sche Streuung („skew scattering“). Hierbei handelt es sich um einen asymmetrischen Streuprozess an Störpotentialen (vgl. dazu [99]). Zusätzlich kann es zu einer lateralen Versetzung der Wellenfunktion beim Streuprozess kommen („side jump“) [100], was durch die gestrichelten Linien in Abbildung 6.5 skizziert wird.

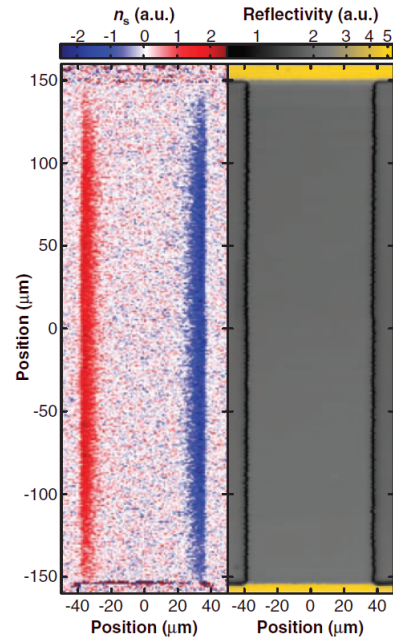
**Abbildung 6.5:** Spinabhängige Streuung an einem attraktiven Störpotenzial. Skizziert sind hier „skew scattering“ (durchgezogene Linien) und „side jump“ (gestrichelte Linie). Letzterer ist durch eine Versetzung der Wellenfunktion beim Streuprozess bedingt. Grafik aus [98].



### 6.2.2. Der Spin-Hall-Effekt in Graphen

Die Existenz des Spin-Hall-Effekts wurde erstmalig im Jahr 2004 experimentell von Kato *et al.* bestätigt [101]. Als Proben wurden dabei dünne Schichten aus GaAs und verspannten InGaAs verwendet. Die Verspannung macht es möglich, Erkenntnisse über den intrinsischen Spin-Hall-Effekt zu gewinnen.

Der Nachweis des Spin-Hall-Effekts gelang dabei mittels Kerr-Rotationsmikroskopie. Bei dieser Methode wird ein Laserstrahl mit linear polarisiertem Licht senkrecht auf die Probe gelenkt. Der reflektierte Strahl erfährt dabei eine Rotation der Polarisationsrichtung, dessen Winkel direkt proportional zur Nettomagnetisierung des Elektronenspins ist [101].



**Abbildung 6.6:** Nachweis des Spin-Hall-Effekts mittels Kerr-Rotationsmikroskopie. Gezeigt sind hier die Spindichte  $n_s$  und ein optisches Bild einer GaAs-Probe bei  $T = 30\text{K}$ . An zwei Kontakten jeweils am unteren und oberen Probenende wurde ein elektrisches Feld von  $E = 10 \frac{\text{mV}}{\mu\text{m}}$  angelegt, wodurch senkrecht dazu an den Probenrändern eine signifikante Akkumulation paritärer Spinrichtungen festgestellt werden kann. Grafik aus [101].

Diese Drehung der Polarisation des reflektierten Strahls kann mit einer Photodiode gemessen werden. Abbildung 6.6 zeigt unter anderem die gemessenen Spindichten innerhalb der Probe ohne ein äußeres Magnetfeld bei senkrechtem Stromfluss. Als Folge des Spin-Hall-Effekts sieht man die Akkumulation der Spins mit unterschiedlicher Magnetisierung an den Probenrändern deutlich.

Der Nachweis des Spin-Hall-Effekts in zweidimensionalem Graphen gestaltet sich schwieriger. Die für den Effekt ursächliche Spin-Bahn-Wechselwirkung der Ladungsträger ist in Kohlenstoff mit der geringen Ordnungszahl  $Z = 6$  nur mäßig ausgeprägt. Der intrinsische Anteil der Spin-Bahn-Wechselwirkung  $\Delta_{int}$  liegt aufgrund der schwachen intraatomaren Spin-Bahn-Kopplung  $\Delta$  erwartungsgemäß niedrig bei  $\Delta_{int} \approx 0,01K$ , wobei dieser Wert durch ein Rashbafeld von  $\epsilon \approx 50V/300nm$  auf  $\Delta_\epsilon = 0,07K$  und durch Korrugation der Graphenoberflächen auf  $\Delta_{curv} = 0,2K$  ansteigen kann [102]. Umgerechnet bedeutet dies eine Spin-Bahn-Kopplung im Bereich von  $1 - 20\mu eV$ . Dieser niedrige Wert macht eine direkte Messung des Spin-Hall-Effekts in Graphen schwierig.

Ein weiterer Ansatz zur Detektion eines großen Spin-Hall-Signals in Graphen bietet die Zeeman-Aufspaltung. Dabei müsste es unter dem Einfluss eines äußeren magnetischen Feldes und geringer Ladungsträgerkonzentration zu einem Ungleichgewicht des Hallwiderstands für Spins unterschiedlicher Richtungen kommen. Die Grundannahme der Theorie basiert darauf, dass Spinströme nicht Ursache der Spin-Bahn-Wechselwirkung sind, sondern durch die Kopplung des Spins und des Bahndrehimpulses an das externe magnetische Feld verursacht werden. Die Zeemanaufspaltung hebt die Entartung der Spins auf, so dass ein Spinstrom im Hallwiderstand detektiert werden kann [103].

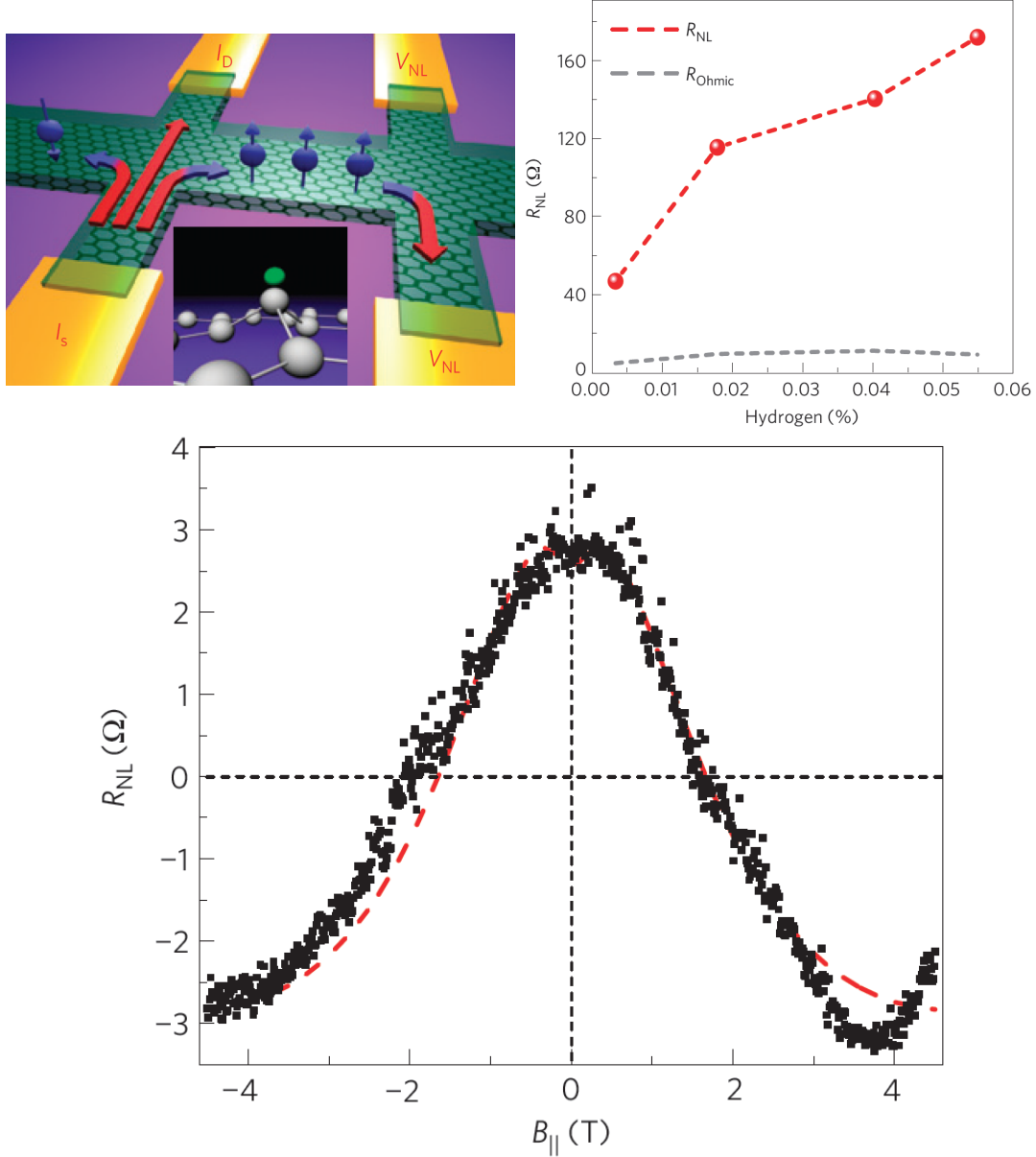
Um in Graphen ein messbares Spin-Hall-Signal zu erzeugen, bedarf es einer Erhöhung der Spin-Bahn-Wechselwirkung. Dies kann durch den gezielten Einbau von Störstellen erfolgen. Durch Betrachtung der  $\sigma$ - und  $\pi$ -Basiszustände in Graphen kann mit Hilfe eines geschickt eingeführten Parameters  $A$  die Spin-Bahn-Wechselwirkung wie folgt abgeschätzt werden [104]:

$$\frac{\Delta_{SO}^I}{\Delta_{SO}^{at}} \approx A\sqrt{3(1-A^2)} . \quad (6.10)$$

Dabei bezeichnet  $\Delta_{SO}^I$  die effektive Stärke der Spin-Bahn-Kopplung und  $\Delta_{SO}^{at}$  die atomare Spin-Bahn-Kopplung des Kohlenstoffs. Durch geeignete Wahl der Orbitalbasiszustände der Hybridorbitale, der  $\sigma$ - und  $\pi$ -Bänder entspricht dabei  $A = 0$  einer kompletten  $sp^2$ -Hybridisierung und  $A = 1/2$  einer kompletten  $sp^3$ -Hybridisierung. Im letzteren Fall, quasi im Material Graphen, wäre die Stärke der Spin-Bahn-Kopplung 75% des atomaren Wertes und würde daher bei einigen meV liegen [104].

Ein indirekter Nachweis des Spin-Hall-Effekts in Graphen gelang schließlich im Jahr 2013 durch Balakrishnan *et al.* in einer nicht-lokalen H-Geometrie [105]. Dabei wurde Graphen zunächst mit HSQ-Lack bedeckt. Durch den Beschuss

mit Elektronen kann gezielt Wasserstoff abgespalten werden, der lokal eine  $sp^3$ -Hybridisierung bewirkt und damit die Spin-Bahn-Wechselwirkung signifikant erhöht.



**Abbildung 6.7:** Messung des Spin-Hall-Effekts an mit Wasserstoff angereichertem Graphen in nicht-lokaler H-Geometrie. Die Grundidee besteht darin, dass ein spinpolarisierter Strom einen senkrecht dazu stehenden Ladungsstrom erzeugt (inverser Spin-Hall-Effekt). Dieser führt in nicht-lokaler Messgeometrie zu einem deutlichen Anstieg des Widerstandssignals und bei Anlegen eines magnetischen Feldes zu einer charakteristischen Hanle-Präzessionskurve. Graphiken aus [105].

Das linke obere Bild in Abbildung 6.7 zeigt die Probenstruktur in der nicht-lokalen Geometrie. Durch den Spin-Hall-Effekt kommt es beim Anlegen eines Stroms von  $I_S$  nach  $I_D$  zu einer Spinpolarisation senkrecht dazu. Dieser Spinstrom erzeugt im nächsten Hall-Ast aufgrund des inversen Spin-Hall-Effekts einen Ladungsstrom und damit einen messbaren Spannungsabfall.

Der rechte obere Graph in Abbildung 6.7 zeigt diesen nicht-lokalen Widerstand für verschiedene Wasserstoffkonzentrationen am Graphen (rot gestrichelte Linie). Der Spannungsabfall wird mit zunehmender Wasserstoffkonzentration höher und liegt deutlich über dem ohmschen Beitrag der nicht-lokalen Messung. Dies ist ein erstes Indiz auf den Spin-Hall-Effekt. Bestätigt wird dies zusätzlich durch Spinpräzessionsmessungen (unterer Graph in Abbildung 6.7). Das oszillierende Signal des nicht-lokalen Widerstands, bedingt durch ein magnetisches Feld in der Ebene, kann mit der Gleichung [106]

$$R_{NL} = \frac{1}{2} \gamma^2 \rho W \cdot \Re \left[ \left( \frac{\sqrt{1 + i\omega_B \tau_s}}{\lambda_s} \right) e^{-\frac{\sqrt{1 + i\omega_B \tau_s}}{\lambda_s} |L|} \right] \quad (6.11)$$

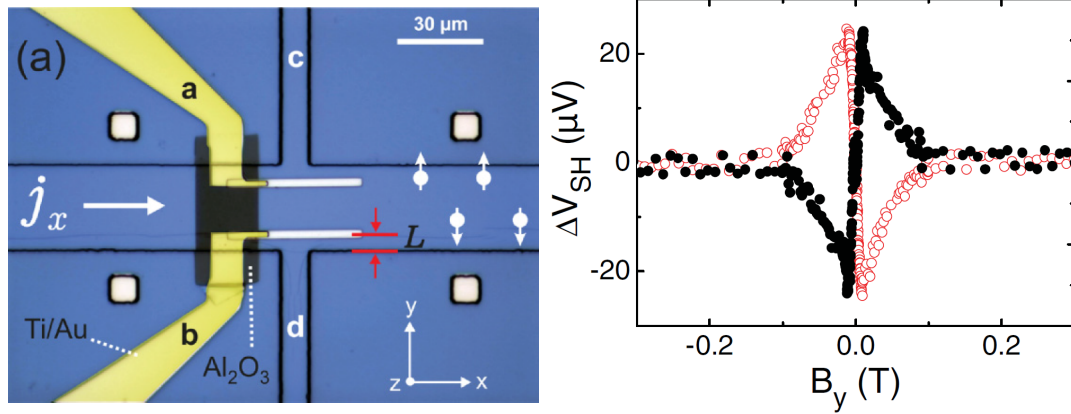
beschrieben werden, wobei  $L$  und  $W$  die Probengeometrie beinhalten.  $\omega_B$  ist die Larmorfrequenz,  $\lambda_s$  die Spindiffusionslänge,  $\tau_s$  die Spinrelaxationszeit,  $\rho$  der Schichtwiderstand und  $\gamma = \sigma_{SH}/\sigma$  der Spin-Hall-Winkel. Quantitativ konnte dadurch bei einer Probe mit  $L/W = 5$  und  $\mu = 20.000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  die Spindiffusionslänge und der Spin-Hall-Winkel zu  $\lambda_s \approx 1,6 \mu\text{m}$  und  $\gamma \approx 0,18$  bestimmt werden [105].

Eine eigene Simulation mit denen in der Arbeit von Balakrishnan *et al.* gemessenen Daten konnte den Spinpräzessionsgraphen in Abbildung 6.7 allerdings nur dann vernünftig reproduzieren, wenn die Spinrelaxationszeit im Bereich von 20ps gewählt wurde. Dies steht in großer Diskrepanz zur Bestimmung der Spinrelaxationszeit aus direkten Hanlemessungen, wo diese mit  $\tau_s = 200 \text{ ps}$  angegeben wurde (vgl. Supplementary Information zu [105]).

Obwohl durch das oben beschriebene Experiment der Spin-Hall-Effekt in Graphen erwiesen scheint, so wirkt es doch gewissermaßen unbefriedigend, dass nur durch die Messung von nicht-lokalen Spannungssignalen auf spinpolarisierte Ströme geschlossen wird. Ein direkter, elektrischer Nachweis wurde bisher nicht erbracht. Ziel dieser Arbeit wird es nun im folgenden Kapitel 7 sein, den Spin-Hall-Effekt direkt mit ferromagnetischen Kontakten zu messen. Die verwendete Probenstruktur orientiert sich dabei in erster Linie an der Arbeit von Ehlert *et al.* [107] über die direkte Messung des Spin-Hall-Effekts in GaAs (vgl. linkes Bild in Abbildung 6.8). Geht man von einem Stromfluss in  $\hat{x}$ -Richtung aus und betrachtet man diejenigen Spins, die senkrecht aus der Ebene in  $\hat{z}$ -Richtung herausstehen, so dreht ein in  $\hat{y}$ -Richtung angelegtes Magnetfeld diese Spins in die  $xy$ -Ebene. Aufgrund des Spin-Hall-Effekts werden die Spins zusätzlich an den oberen und unteren Rand der Probe gedrängt, wo sie von ferromagnetischen Kontakten detektiert werden können. Aus dem charakteristischen Spannungsabfall über den ferromagnetischen Kontakten (rechter Graph in Abbildung 6.8) können schließlich mittels einer mo-



difizierten Hanleformel typische Größen wie zum Beispiel die Spinhalbleitfähigkeit bestimmt werden.



**Abbildung 6.8:** Direkte Messung des Spin-Hall-Signals an GaAs. Die aus der Ebene herausragenden Spins der Ladungsträger im Strom  $j_x$  werden mittels eines Magnetfeldes  $B_y$  in die Ebene gedreht. Spin-up und Spin-Down Elektronen akkumulieren dabei an den beiden Rändern der Probe und können mit ferromagnetischen Kontakten detektiert werden. Das charakteristische Spannungssignal hängt davon ab, ob die Streifen in positive  $\hat{x}$ -Richtung (schwarze Kurve) oder negative  $\hat{x}$ -Richtung (rote Kurve) aufmagnetisiert sind. Graphiken aus [107].



## 7. Experimentelle Untersuchungen zum Spin-Hall-Effekt in Graphen

Im letzten Kapitel dieser Dissertation werden die Spintransportexperimente in Graphen vorgestellt. Zuerst wird auf das Probendesign eingegangen, mit dem Spin-Ventil-, Hanle- und Spin-Hall-Messungen auf einer Struktur möglich gemacht werden. Die Herstellungsmethoden sind dabei die gleichen, wie die in Kapitel 3 bereits ausführlich erläuterten Verfahren.

Anschließend werden Messungen zur Spininjektion, Spinpräzession und dem Spin-Hall-Effekt vorgestellt. Insbesondere eine AMR-Charakterisierung der ferromagnetischen Streifen und erfolgreiche in-plane-Hanlemessungen untermauern, dass der Spin-Hall-Effekt direkt gemessen werden kann und dass es sich nicht um parasitäre Effekte handelt.

Zur Unterstützung dieser These werden noch weitere Messungen in nicht-lokaler H-Geometrie vorgestellt, die aufgrund des Spin-Hall-Effekts einen deutlich höheren Widerstandswert liefern, als man es für einen rein ohmschen Beitrag erwarten würde. Abschließend wird noch eine Zusammenfassung der Spintransportexperimente und ein Ausblick auf weitere Messungen gegeben.

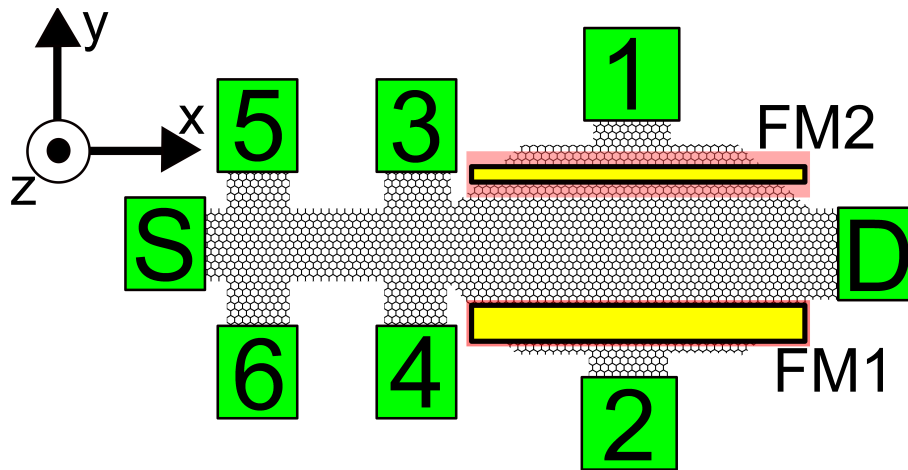
### 7.1. Probenstruktur zur Untersuchung des Spintransports in Graphen

Die Abmessungen von exfolierten Graphenstücken liegen in der Regel im Bereich weniger  $10\mu\text{m}$ . Um jedoch möglichst viele Erkenntnisse gewinnen zu können bzw. sowohl elektrische, als auch spinbedingte Transporteigenschaften auf ein und derselben Probe effektiv vergleichen zu können, müssen eine Vielzahl von Kontakten auf einer möglichst geringen Fläche angebracht werden.

Abbildung 7.1 zeigt das prinzipielle Probendesign bestehend aus sechs Hallabgriffen, Source- und Drain-Kontakten und zwei ferromagnetischen Kontakten unterschiedlicher Breite. Durch die verwendeten Methoden zur Probenherstellung ist es möglich, eine solche Struktur auf exfoliertem Graphen mit Abmessungen von mindestens  $12\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$  zu realisieren.

In diesem speziellen Probendesign bieten sich zahlreiche Messmöglichkeiten. Für die Untersuchung des elektrischen Transports kann ein Strom von Source nach

Drain geführt werden und mit den Kontakten 3 bis 6 Längs- und Hallspannungen gemessen werden. Zusätzlich sind nicht-lokale Spin-Ventil- und Hanlepräzessionsmessungen durchführbar, indem man zum Beispiel den Strompfad zwischen den Kontakten 2 und FM1 wählt und die nicht-lokale Spannung an den Kontakten 1 und FM2 abgreift. Die Messung des Spin-Hall-Effekts selbst geschieht schließlich mit der am Ende von Kapitel 6 präsentierten Methode, die in  $\hat{z}$ -Richtung orientierten Spins von Source- zu Drainkontakt über ein Magnetfeld in  $\hat{y}$ -Richtung in die  $xy$ -Ebene zu drehen, wo sie dann am Probenrand akkumulieren und von den ferromagnetischen Kontakten FM1 und FM2 detektiert werden können. Gleichzeitig kann in dieser Konfiguration eine mögliche, von null verschiedene Querspannung über die Hallkontakte 1 und 2 gemessen werden, damit dieses Signal mit dem Spin-Hall-Signal verglichen werden kann.



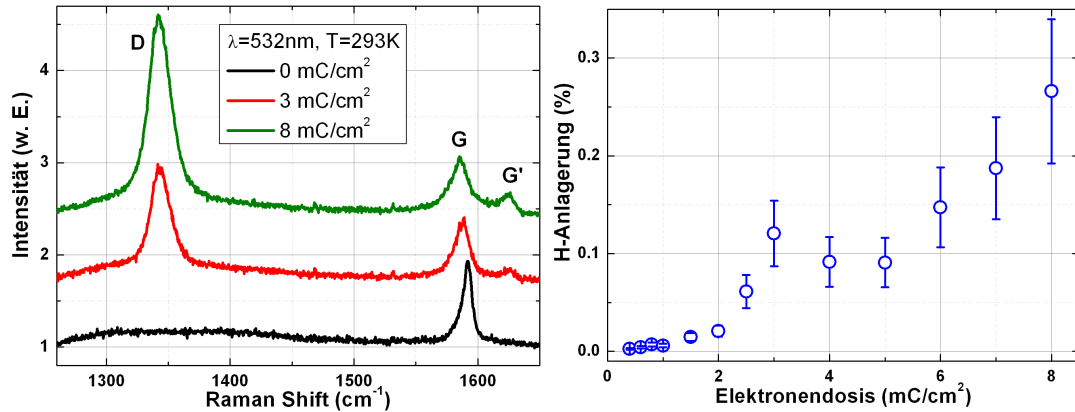
**Abbildung 7.1:** *Probendesign zur Untersuchung des Spintransports in Graphen. Die nicht-ferromagnetischen Kontakte sind grün, die lokalen Tunnelbarrieren rot und die ferromagnetischen Kontakte gelb dargestellt. Mit dieser Struktur können gleichzeitig Spin-Ventil-, Hanle-, direkte Spin-Hall- und nicht-lokale Spin-Hall-Experimente durchgeführt werden.*

Für die Probenherstellung wurden die Fabrikationsmethoden angewandt, die bereits in Kapitel 3 vorgestellt wurden. Eine detaillierte Auflistung der einzelnen Prozessschritte findet sich im Anhang A.

Beginnend mit exfoliertem Graphen aus HOPG wird mittels Elektronenstrahlithographie eine Ätzmaske geschrieben. Anschließend wird mit einer Mischung aus Sauerstoff- und Argonplasma die in Abbildung 7.1 gezeigte Struktur herausgeätzt. Für die Herstellung lokaler Tunnelbarrieren und ferromagnetischer Streifen bedarf es eines weiteren EBL-Schrittes. Nach dem Herstellen der Lackmaske werden mit einer UHV-Aufdampfanlage bei einem flüssigstickstoffgekühlten Probenhalter etwa 0,8nm elementares Aluminium aufgetragen und dieses für mindestens zwei Stunden in reiner Sauerstoffatmosphäre durchoxidiert. Darauf werden mittels der

Anlage UNIVEX A weitere 20nm Cobalt und 3nm Gold aufgedampft. Die dünne Goldschicht bildet dabei einen Korrosionsschutz für die darunterliegenden Cobaltstreifen. Für die Ankontaktierung des Graphens bzw. der ferromagnetischen Kontakte werden nach einem weiteren EBL-Schritt schließlich 60nm Palladium aufgedampft.

In Kapitel 6 wurde bereits das Problem der geringen Spin-Bahn-Kopplung in Graphen angesprochen. Eine Möglichkeit diese zu erhöhen liegt in der Anlagerung von Wasserstoff. Dazu wird auf die Probe zunächst in MIBK gelöster Hydrogensilbesquioxane-Lack (HSQ) aufgeschleudert. Durch den Beschuss mit Elektronen dissoziiert Wasserstoff vom Lack und bildet am Graphen  $sp^3$ -hybridisierte C-H-Bindungen, welche die Spin-Bahn-Kopplung erhöhen. Die Bildung von hydrogeniertem Graphen kann mittels Ramanuntersuchungen bestätigt werden. Zudem ist der Prozess reversibel, wenn man die Proben thermisch bei 100°C bis 200°C ausheizt [108].



**Abbildung 7.2:** Bestimmung der Wasserstoffkonzentration an Graphen durch Ramanmessungen. Je höher die Elektronendosis für die Bestrahlung des HSQ-Lacks auf Graphen ist, desto ausgeprägter wird der D-Peak im Raman-Spektrum. Das Verhältnis der Intensitäten von D- zu G-Peak lässt darauf schließen, wieviele Kohlenstoffatome  $sp^3$ -hybridisiert sind (rechter Graph). Die Wasserstoffanlagerung sollte linear von der Elektronendosis abhängen. Abweichungen hiervon können dadurch bedingt sein, dass sich auf dem quadratischen Chip der HSQ-Lack nicht homogen aufschleudern lässt und insbesondere Graphenproben am Chiprand eine höhere Wasserstoffkonzentration zeigen.

Eine Analysemöglichkeit zur Analyse der Wasserstoffanlagerung an Graphen bietet die Ramanspektroskopie. Der linke Graph in Abbildung 7.2 zeigt die aufgenommenen Ramanspektren für drei verschiedene Belichtungs Dosen. Während im unbelichteten Fall kein D-Peak zu sehen ist, steigt dieser für höhere Dosen. Gleichzeitig sinkt die Intensität des G-Peaks und der G'-Peak erscheint.

Aus dem Intensitätsverhältnis zwischen D- und G-Peak lässt sich die Wasserstoffanlagerung und der damit verbundene Anteil  $sp^3$ -hybridisierter Kohlenstoffatome in Graphen gemäß folgender Formel abschätzen [109]:

$$L_D^2(nm^2) = (1,8 \pm 0,5) \times 10^{-9} \lambda_L^4 \frac{I_G}{I_D} . \quad (7.1)$$

Dabei bezeichnet  $L_D$  den mittleren Abstand zweier Wasserstoffatome,  $\lambda_L$  die Wellenlänge des Ramanlasers und  $I_D/I_G$  das Intensitätsverhältnis von D- und G-Peak. Die Wasserstoffkonzentration  $H$  ist folglich gegeben durch (siehe Supplementary Information zu [105])

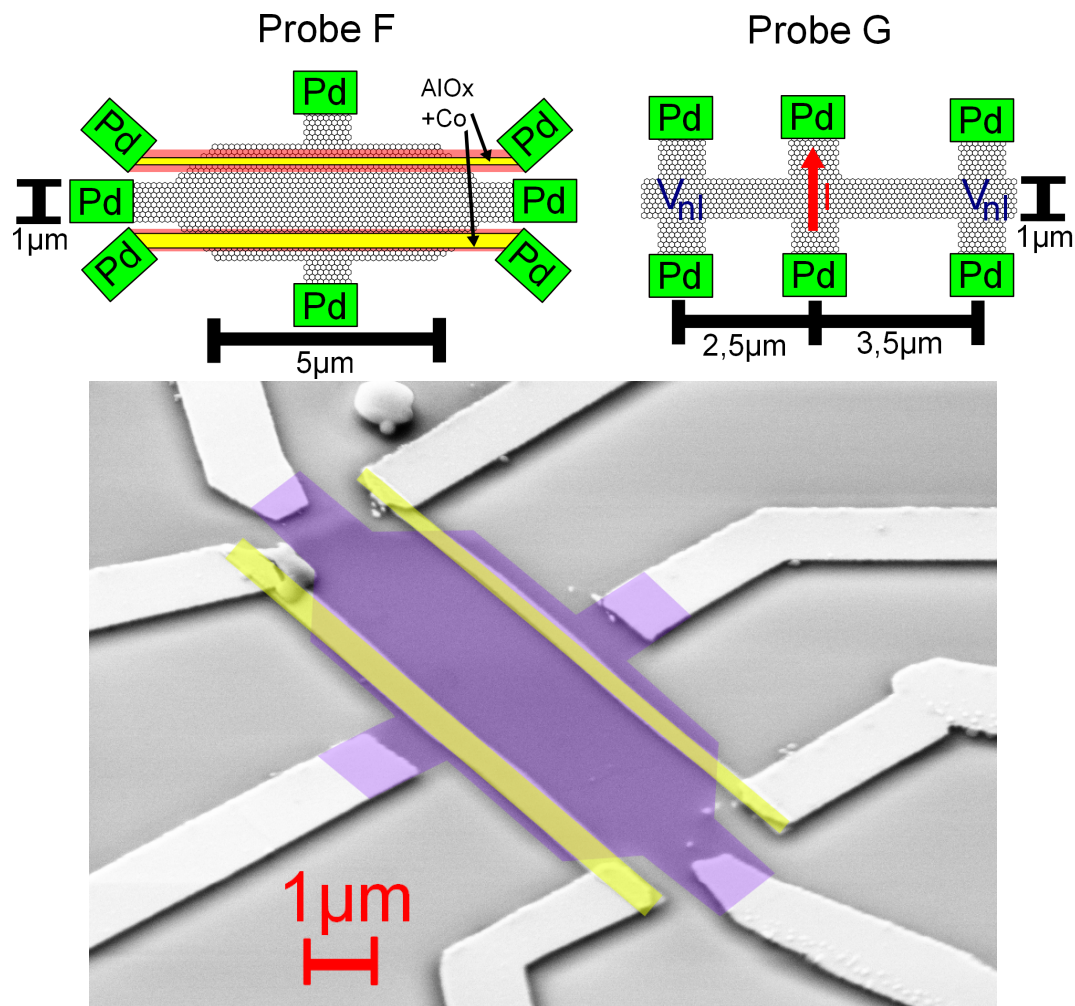
$$H = \frac{3\sqrt{3}}{\pi} \left( \frac{a}{L_D} \right)^2 , \quad (7.2)$$

wobei  $a = 2,46\text{\AA}$  die Gitterkonstante in Graphen bezeichnet. Der prozentuale Anteil der Wasserstoffatome ist im rechten Graphen in Abbildung 7.2 zu sehen. Man kann gut erkennen, dass die Wasserstoffanlagerung mit steigender Elektronendosis leicht parabolisch zunimmt. Manche Datenpunkte weichen von dieser Linie ab, wie zum Beispiel der Messwert zu  $3mC/cm^2$ , welcher deutlich höher als erwartet liegt. Neben möglichen Fehlerquellen in der Justierung des Ramanlasers auf die Probe liegt die Hauptursache darin, dass insbesondere die Messung bei  $3mC/cm^2$  an einer Graphenstruktur nahe am Probenrand durchgeführt wurde. Hier wird die Lackschicht durch das Aufschleudern automatisch dicker. Dies führt bei Belichtung augenscheinlich zu einer höheren Wasserstoffanlagerung. Da die einzelnen Graphenproben, die mit unterschiedlichen Elektronendosen belichtet wurden, einmal näher am Rand und einmal weiter entfernt davon liegen, kam es zu Abweichungen in der Kurve aus Abbildung 7.2.

In den folgenden Kapiteln 7.2 und 7.3 werden nun direkte (Probe F) und indirekte (Probe G) Messungen des Spin-Hall-Effekts vorgestellt und die spinabhängigen Transportparameter extrahiert. Auf beiden Proben wurde HSQ-Lack aufgeschleudert und mit einer Elektronendosis von  $4mC/cm^2$  belichtet, um Wasserstoff anzulagern und damit die Spin-Bahn-Kopplung in Graphen zu erhöhen. Es sei an dieser Stelle betont, dass beide Proben gleichzeitig gefertigt wurden und sämtliche Fabrikationsschritte gemeinsam durchlaufen haben. An Probe F konnte das Probenesign aus Abbildung 7.1 nicht angewandt werden, da die Graphenflocke zu klein war. Daher wurde auf die Hallabgriffe verzichtet und nur der Bereich der ferromagnetischen Kontakte strukturiert (vgl. Abbildung 7.3). Bei Probe G hingegen funktionierten entscheidende Kontakte an den Ferromagneten nicht, jedoch konnte hier auf mehrere Hallpaare zurückgegriffen werden, womit der Spin-Hall-Effekt in nicht-lokaler Geometrie verifiziert werden kann (vgl. Abbildung 7.3).

Für die Messung selbst wurde ein 3D-Kryostat verwendet, mit dem ein Magnetfeld bis zu einem Tesla in beliebige Raumrichtungen angelegt werden kann. Als Gleichstromquelle diente die Keithley 6221 Current Source. Sämtliche Spannungen

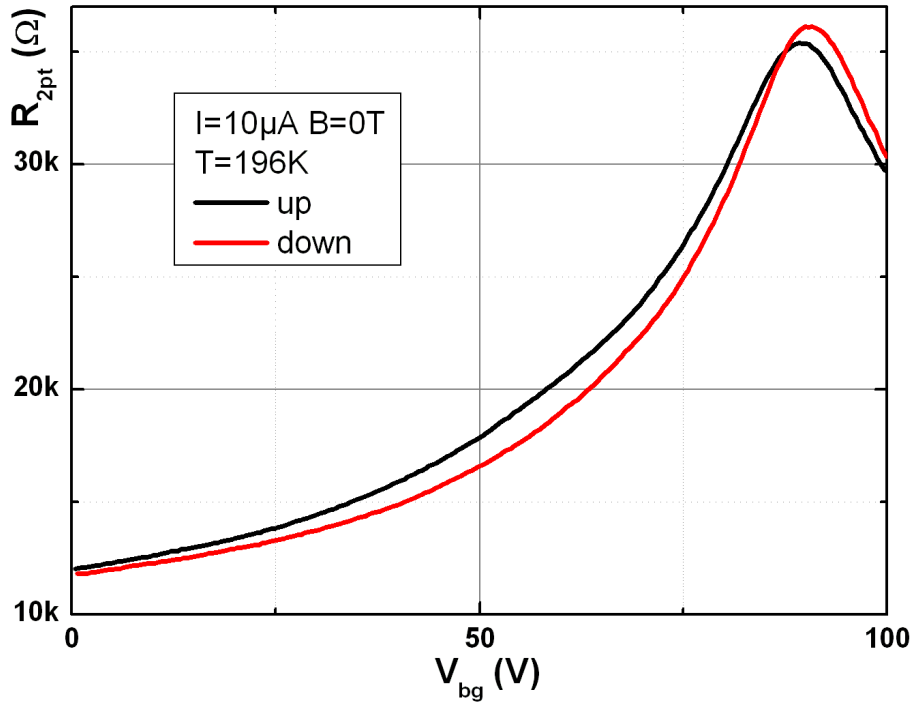
wurden mit dem Agilent 34420A Nanovoltmeter gemessen. Für die Backgatespannungen wurden die bereits aus Kapitel 3.3 bekannten Sourcemeter Keithley 2400 und Yokogawa 7651 verwendet.



**Abbildung 7.3:** Aufbau und Abmessungen von Probe F und Probe G. An Probe F kann der Spin-Hall-Effekt direkt nachgewiesen werden und an Probe G durch nicht-lokale Messungen verifiziert werden. Unten ist eine REM-Aufnahme der Probe F unter einem Kippwinkel von  $45^\circ$  zu sehen. Das Graphen ist violett, die ferromagnetischen Cobaltstreifen sind gelb markiert.

## 7.2. Probe F: Direkte Messung des Spin-Hall-Effekts in Graphen

Anhand der Probe F sollen nun die relevanten Parameter für den Ladungs- und Spintransport festgestellt werden. Für eine grundlegende Charakterisierung wurde zunächst ein Backgatesweep durchgeführt.



**Abbildung 7.4:** Probe F: Zweipunktwidestand in Abhängigkeit der Backgate-spannung. Die Probe ist sehr stark p-dotiert und weist eine Gatehysteresis auf. Ursächlich hierfür ist der sich auf dem Graphen befindliche HSQ-Lack und die Wasserstoffanlagerung am Graphen, die durch den Beschuss mit Elektronen erzeugt wurde.

Abbildung 7.4 visualisiert den gemessenen Zweipunktwidestand bei einem Backgatesweep. Der Strom führt dabei entlang der  $\hat{x}$ -Richtung der Probe, also parallel zu den Cobalt-Streifen. Die Kurve zeigt sowohl ein leichtes Hystereseverhalten, als auch unterschiedliche Widerstandsmaxima am Diracpunkt. Dies lässt sich dadurch erklären, dass die gesamte Struktur mit HSQ-Lack bedeckt ist. Dieser bietet ähnlich wie ein Topgatedielektrikum nicht abgesättigte Bindungen. Außerdem können im Lack geladene Störstellen vorhanden sein.

Zudem befindet sich der Diracpunkt mit  $V_{bg} = (90 \pm 0,8)V$  sehr weit im Bereich positiver Spannungen. Auch hierfür ist in erster Linie die HSQ-Lackschicht auf dem Graphen verantwortlich. Der Widerstand selbst ist für eine Graphenprobe



ungewöhnlich hoch. Da der HSQ-Lack mit einer Elektronendosis von  $4mC/cm^2$  belichtet worden ist, hat sich Wasserstoff abgespalten und bindet sich ans Graphen. Gemäß der Messungen zur Wasserstoffkonzentration (vgl. Abbildung 7.2) sind damit etwa 0,1% der Kohlenstoffatome in  $sp^3$ -hybridisiertem Zustand, was sich in einer Widerstandserhöhung äußert.

Die teilweise Umformung von Graphen zu Graphan durch Wasserstoffanlagerung hat auch eine unmittelbare Auswirkung auf die Beweglichkeit der Probe. Für diese kann aus den Widerstandskurven der Zweipunktmessungen eine untere Grenze gefunden werden. Dabei wird davon ausgegangen, dass bei der Zweipunktmessung der Kontaktwiderstand von Palladium zu Graphen sehr viel kleiner ist, als der Widerstand der Probe selbst. Somit gilt für die Leitfähigkeit  $\sigma = \frac{L}{W} \frac{1}{R_{2pt} + R_{Kontakt}} \approx \frac{L}{W} \frac{1}{R_{2pt}}$ .

Problematisch ist bei dieser Betrachtungsweise der Geometriefaktor, da im Bereich des Stromflusses die Struktur nicht durchgehend rechteckig ist (vgl. dazu Abbildung 7.3). Source- und Drainkontakt sind insgesamt  $9\mu m$  voneinander entfernt. Die volle Breite von  $3\mu m$  erreicht die Probe über eine Länge von  $5\mu m$ , bis sie sich beidseitig über  $1\mu m$  unter  $45^\circ$  auf eine Breite von  $1\mu m$  verschmälert. Eine passable Abschätzung für den Geometriefaktor kann nur in etwa gemacht werden. Er liegt zwischen  $\frac{7\mu m}{3\mu m} < \frac{L}{W} < \frac{9\mu m}{3\mu m}$ .

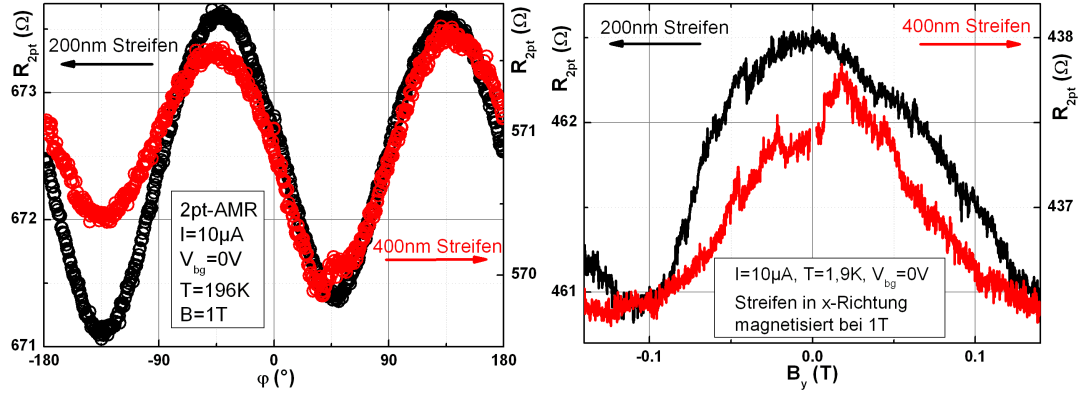
Unter Einbezug der verschiedenen Geometriefaktoren kann die Löcherbeweglichkeit der Graphenprobe zu mindestens  $\mu = (190 \pm 30) \frac{Vs}{cm^2}$  bestimmt werden. Dieser sehr geringe Wert kommt wiederum dadurch zu Stande, dass das Graphen mit HSQ-Lack bedeckt ist und der angelagerte Wasserstoff die Beweglichkeit der Ladungsträger stark einschränkt.

Anschließend wurde die Qualität der ferromagnetischen Streifen untersucht. Diese bestehen aus 20nm Cobalt und einer 3nm Goldschicht als Oxidationsschutz.

Zunächst wurden AMR-Messungen an den ferromagnetischen Streifen durchgeführt, um die Ausrichtung der Probe im Kryostaten zu ermitteln (vgl. linker Graph in Abbildung 7.5). Dabei wird längs der Streifen ein Strom von  $I = 10\mu A$  angelegt. Das Magnetfeld beträgt  $B = 1T$  und kann in der xy-Ebene der Probe rotiert werden.

Erwartungsgemäß zeigt der breitere 400nm-Streifen einen geringeren Gesamtwiderstand als der schmalere 200nm-Streifen. Die Widerstände zeigen die charakteristische  $\cos^2$ -Abhängigkeit des AMR-Effekts. Das Maximum im Widerstand erscheint in Cobalt dann, wenn das Magnetfeld parallel zur Stromrichtung zeigt, während ein Minimum genau dann zu finden ist, wenn Magnetfeld und Stromrichtung senkrecht aufeinander stehen. Die Differenz zwischen Widerstandsmaximum und -minimum beträgt  $1,8\Omega$  für den 400nm breiten Streifen und  $2,5\Omega$  für den 200nm breiten Streifen, was relativen Effekthöhen von 0,37% und 0,31% entspricht. Die Lage der Maxima bei  $\varphi = -50^\circ$  und  $\varphi = 130^\circ$  ( $\hat{x}$ -Richtung) und die Lage der Minima bei  $\varphi = 40^\circ$  und  $\varphi = -140^\circ$  ( $\hat{y}$ -Richtung) deckt sich dabei exakt mit der geometrischen Lage der Probe im Kryostaten unter Einbezug des Fabrikationswinkels der Streifen. Durch die erfolgreiche Messung des AMR-Effekts kann

gezeigt werden, dass eine Bedeckung der Cobaltstreifen mit Gold keinen Einfluss auf die ferromagnetischen Eigenschaften der Elektroden hat und somit prinzipiell Spininjektion und -detektion möglich ist.



**Abbildung 7.5:** Probe F: Untersuchung der ferromagnetischen Streifen. Im linken Bild sind AMR-Kreis-Messungen zu sehen. Der Widerstand wird dann maximal, wenn die Magnetisierung parallel zur Stromrichtung verläuft. Der rechte Graph zeigt die Stabilität der in Längsrichtung magnetisierten Streifen, wenn das Magnetfeld senkrecht dazu erhöht wird. Man kann davon ausgehen, dass die Magnetisierung bis zu einem Wert von  $B_y = \pm 50mT$  weitestgehend erhalten bleibt.

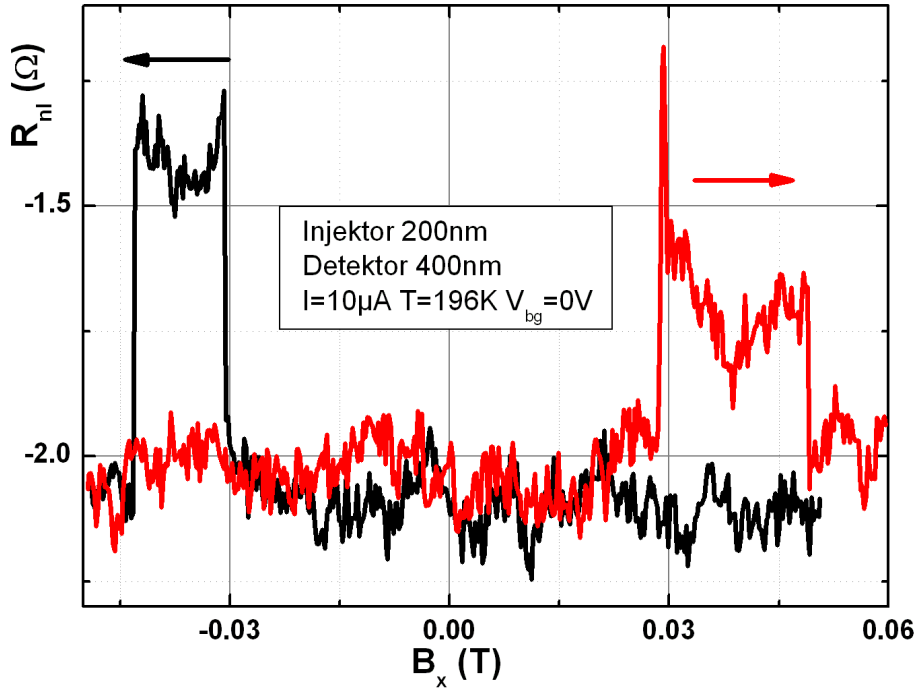
Des Weiteren ist es für die Messung von y-Hanlepräzession und des Spin-Hall-Effekts entscheidend, dass die Cobaltstreifen ihre Magnetisierung entlang der  $\hat{x}$ -Richtung behalten, wenn ein zusätzliches Magnetfeld in  $\hat{y}$ -Richtung angelegt wird. Dazu werden die Streifen zunächst entlang der leichten Achse mit  $B = 1T$  aufmagnetisiert. Das Magnetfeld wird dann auf 0 zurückgedreht und langsam senkrecht dazu hochgefahren. Während der Erhöhung des Magnetfeldes in  $\hat{y}$ -Richtung wird der Widerstand der Cobaltstreifen gemessen.

Der rechte Graph in Abbildung 7.5 zeigt die gemessenen Widerstandswerte der Streifen beim Hochfahren des Magnetfeldes entlang der schweren Achse. Falls die Streifen ihre Magnetisierung beibehalten, sollte sich der Widerstand nicht ändern. Sobald sich der Streifen in  $\hat{y}$ -Richtung magnetisiert hat, stehen Strom und Magnetfeld senkrecht zueinander und der gemessene Widerstand wird aufgrund des AMR-Effekts kleiner. Wie man in Abbildung 7.5 gut erkennen kann, verhalten sich die beiden Streifen in dieser Hinsicht unterschiedlich, wobei erwartungsgemäß der schmalere der Beiden eher seine Magnetisierung behält. In Hinblick auf die Spinpräzessionsmessungen zeigt diese Messung, dass die Streifen bei Feldern im Bereich  $B_y = [-50mT, +50mT]$  ihre Magnetisierung in  $\hat{x}$ -Richtung weitestgehend behalten. Dies ist eine der Grundvoraussetzungen für die Messungen von y-Hanlepräzession und Spin-Hall-Effekt.

Neben der oben beschriebenen Untersuchung zur magnetischen Stabilität der Streifen muss als Grundlage für die Messung des Spin-Hall-Effekts gezeigt wer-

den, dass in dieser Struktur Spins injiziert und detektiert werden können. Eine Zweipunktmessung der Widerstände bei verschiedenen Strömen hat gezeigt, dass der 200nm breite Streifen einen Tunnelkontakt zum Graphen bildet, während der 400nm breite Streifen einen ohmschen Widerstand zeigt. Messungen, bei denen der transparente Kontakt als Injektor und der Tunnelkontakt als Detektor verwendet wurde, zeigten keine Spinsignale.

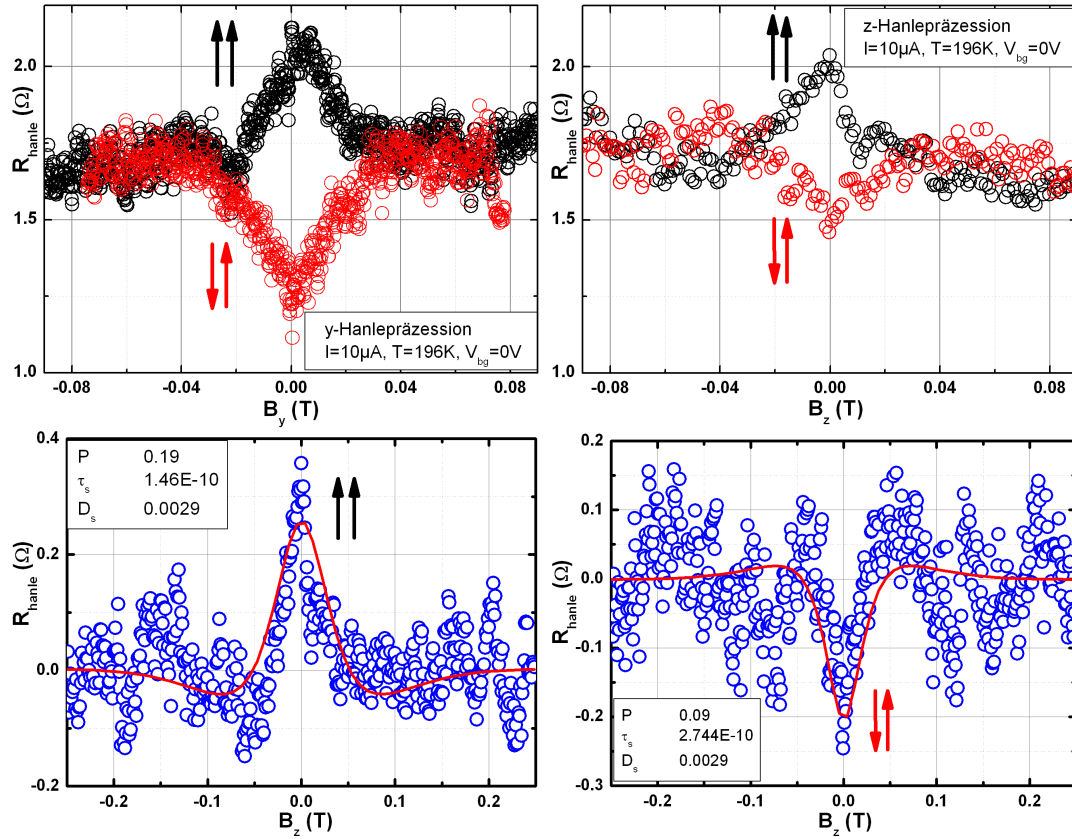
Abbildung 7.6 zeigt eine Spin-Ventil-Messung, bei denen der Tunnelkontakt (200nm Streifen) als Injektor und der transparente Kontakt als Detektor fungierten. Die Messung wurde bei  $V_{bg} = 0V$  und somit im Bereich sehr hoher Löcherdichte durchgeführt. Das Schaltfeld des 400nm breiten Streifens liegt bei etwa 30mT und das Schaltfeld des 200nm breiten Streifens liegt zwischen 43mT und 49mT. Die Höhe des nicht-lokalen Signals der Spin-Ventil-Messung beträgt ungefähr  $\Delta R_{nl}^{SV} \approx 0,7\Omega$ , wenn man das Magnetfeld vom positiven in den negativen Bereich fährt (schwarze Kurve in Abbildung 7.6). Eine quantitative Analyse der Spininjektionseffizienz und der Spindiffusionslänge, zum Beispiel anhand der Gleichung 6.7, gestaltet sich als schwierig, da nur einer der beiden Streifen einen Tunnelkontakt zum Graphen bildet und der andere ohmsch ist.



**Abbildung 7.6:** Probe F: Spin-Ventil-Messung in nicht-lokaler Geometrie. Das Schalten der Cobaltstreifen ist durch die Widerstandsänderung klar erkennbar. Die Effekthöhe für den Downsweep (schwarze Kurve) beträgt in etwa  $\Delta R_{nl}^{SV} \approx 0,7\Omega$ .

Zur weiteren Untersuchung des Spintransports wurden Hanlepräzessionsmessungen durchgeführt. Dabei wurde sowohl das in-plane- als auch das out-of-plane-Verhalten

des nicht-lokalen Widerstandsignals untersucht. Der linke obere Graph in Abbildung 7.7 zeigt ein nicht-lokales Hanlesignal, bei dem das Magnetfeld in  $\hat{y}$ -Richtung angelegt wurde. Sowohl bei paralleler als auch antiparalleler Magnetisierung der Streifen sieht man die charakteristische Widerstandsänderung bei  $B_y = 0\text{T}$ . Der Widerstandsunterschied der beiden Kurven beträgt etwa  $\Delta R_{nl}^y \approx 0,9\Omega$  und liegt damit in guter Übereinstimmung zu  $\Delta R_{nl}^{SV}$ . Die erfolgreiche Messung des in-plane-Hanleeffekts ist eine Grundvoraussetzung zur Messung des Spin-Hall-Effekts, da dadurch bewiesen ist, dass die Spins in der  $xz$ -Ebene präzedieren können.



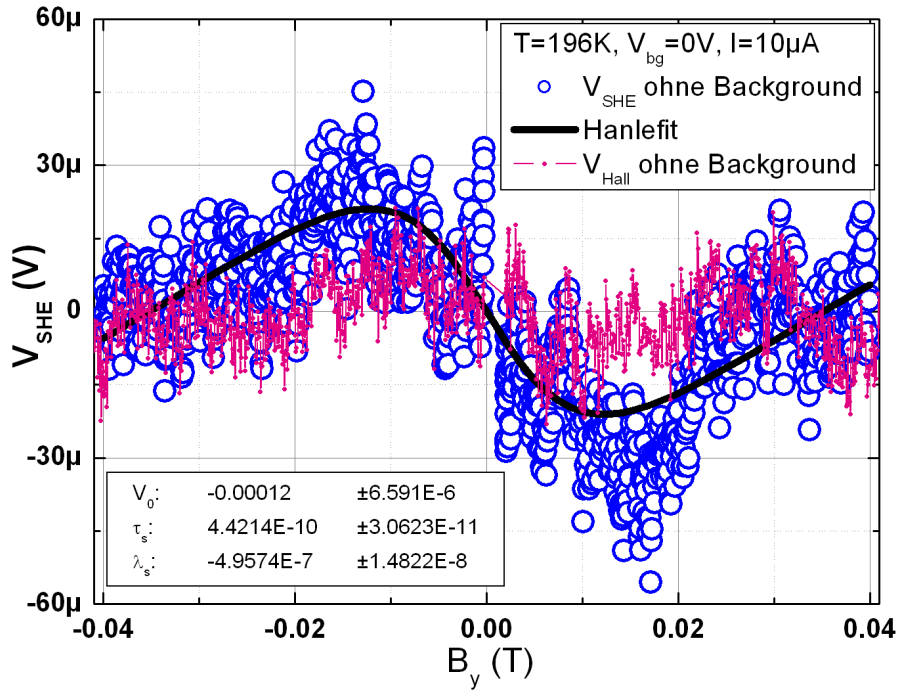
**Abbildung 7.7:** Probe F: Spinpräzessionsmessungen in nicht-lokaler Geometrie. Der Hanleeffekt wird sowohl für Magnetfelder in  $\hat{y}$ -Richtung (links oben) als auch in  $\hat{z}$ -Richtung sichtbar. Die Effekthöhen decken sich dabei mit den Widerstandsänderungen in der Spin-Ventil-Messung. Nach Abzug eines quadratischen Hintergrunds können die relevanten Spintransportparameter in paralleler und antiparalleler Streifenmagnetisierung ermittelt werden (untere Bilder).

Der rechte obere Graph in Abbildung 7.7 zeigt schließlich Hanlepräzessionsmessungen in paralleler und antiparalleler Streifenkonfiguration für ein in  $\hat{z}$ -Richtung angelegtes Magnetfeld. Beide Graphen können durch Gleichung 6.8 angefitet werden und daraus die freien Parameter Spinrelaxationszeit  $\tau_s$  und die Spininjektionseffizienz  $P = P_1 \cdot P_2$  ermittelt werden. Die fixen Fitparameter sind

gegeben durch den mittleren Abstand der beiden ferromagnetischen Kontakte  $L = 2,3\mu m$  und der Breite des Kanals  $W \approx 6\mu m$ . Die Leitfähigkeit  $\sigma_G$  aus Gleichung 6.8 wird näherungsweise als inverser Schichtwiderstand der Graphenprobe bei  $V_{bg} = 0V$  angenommen und beträgt je nach verwendetem Geometriefaktor etwa  $\frac{1}{\sigma_G} = (4500 \pm 500)\Omega$  (vgl. Abbildung 7.4). Als weiterer freier Parameter muss noch die Spindiffusionskonstante  $D_s$  durch die Transportdiffusionskonstante  $D_c$  ersetzt werden:

$$D_c = \frac{1}{2} l_{frei} v_F = \frac{1}{2} \frac{\hbar \sqrt{\pi n_s}}{e} \mu v_F . \quad (7.3)$$

Die Ladungsträgerdichte bei  $V_{bg} = 0V$  beträgt  $n_s = 6,82 \cdot 10^{16} m^{-2}$ . Unter Verwendung der Beweglichkeit von  $\mu = 190 cm^2/Vs$  beträgt die mittlere freie Weglänge etwa  $l_{frei} = 5,8 nm$ , was eine Diffusionskonstante von  $D_s = 0,0029 \frac{m^2}{s}$  zur Folge hat. Als letzter freier Fitparameter wird die Spindiffusionslänge durch die Spinrelaxationszeit gemäß  $\lambda_s = \sqrt{D_s \tau_s}$  ersetzt.



**Abbildung 7.8:** Probe F: Direkte Messung des Spin-Hall-Effekts in Graphen. Gezeigt ist der Spannungsabfall zwischen einem ferromagnetischen Streifen und dem gegenüberliegenden nichtferromagnetischen Hallabgriff. Durch Extraktion des Parameters  $V_0$  kann der Spin-Hall-Winkel bestimmt werden, welcher zwischen  $\gamma_{SHE} = 0,07$  und  $\gamma_{SHE} = 0,11$  liegt. Zusätzlich beinhaltet der Graph die gemessene Hallspannung, deren Amplitude unter dem gemessenen Spin-Hall-Signal liegt.

Da sich die nicht-lokalen Widerstandsmessungen für parallele und antiparallele Streifenmagnetisierung unterscheiden, wurden beide Messungen angefitet, nachdem ein parabolischer Hintergrund abgezogen wurde (siehe untere Graphen in Abbildung 7.7). Bildet man den Mittelwert der angefiteten Parameter, so ergibt sich für die Spinrelaxationszeit  $\tau_s = 210ps$  und für die Spininjektionseffizienz  $P = 14,5\%$ . Die Spindiffusionslänge errechnet sich zu  $\lambda_s = 0,78\mu m$ . Diese Ergebnisse liegen in guter Übereinstimmung mit ähnlich gefertigten Proben [110].

Nach der erfolgreichen Durchführung der Spinpräzessionsmessung und der Extraktion plausibler Werte für  $\tau_s$  und  $P$  wurde der Strom für die Messung des Spin-Hall-Effekts in  $\hat{x}$ -Richtung angelegt und beide Cobaltstreifen parallel magnetisiert. Anschließend wurde das Magnetfeld in  $\hat{y}$ -Richtung erhöht und die Spin-Hall-Spannung über die ferromagnetischen Kontakte und die normale Hallspannung gemessen. Dabei wurde darauf geachtet, die Spannungen erst für positive  $B_y$  zu messen. Anschließend mussten die Streifen wieder aufmagnetisiert werden, bevor man mit dem Bereich negativer  $B_y$  fortfahren konnte.

Abbildung 7.8 zeigt die Messung des Spin-Hall-Effekts in Graphen. Aufgrund funktioneller Probleme des 400nm breiten, ohmschen Kontakts ist hier  $V_{SHE}$  nicht der Spannungsabfall zwischen den beiden Ferromagneten, sondern die gemessene Spannung zwischen dem 200nm breiten Cobaltstreifen mit Tunneleigenschaften und dem gegenüberliegenden Hallkontakt. Dadurch verändert sich die Form der Kurve nicht, nur die Amplitude des Signals sinkt um einen Faktor zwei.

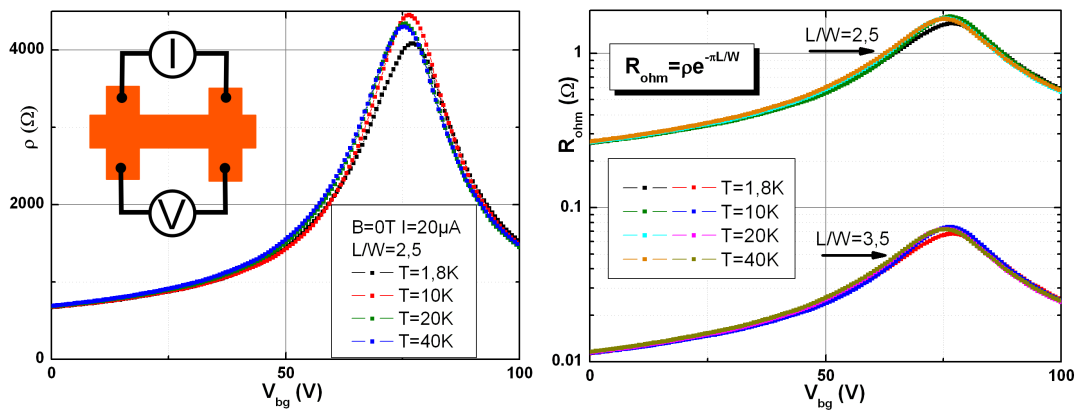
Dieser Graph kann wiederum unter Einbezug der Probengeometrie und der Transportcharakteristika angefitet werden (vgl. dazu [107]). Für die Spinrelaxationszeit ergibt sich hier  $\tau_s = 442ps$  und für die Spindiffusionslänge  $\lambda_s = 0,5\mu m$ . Beide Werte liegen dabei in der Größenordnung der aus den Hanleexperimenten ermittelten Werte. Die effektive Spin-Hall-Spannung  $V_0 = 120\mu V$  zwischen dem oberen und dem unteren Probenrand, die aufgrund des Spinstroms in  $\hat{y}$ -Richtung entsteht, kann für die Berechnung des Spin-Hall-Winkels  $\gamma_{SHE}$  herangezogen werden [107]:

$$\gamma_{SHE} = \frac{\sigma_{SH}}{\sigma_G} = V_0 \frac{\sigma_{xx}}{2Pj\lambda_s} . \quad (7.4)$$

Hier ist zu beachten, dass nur ein ferromagnetischer Kontakt bei der Messung beteiligt war und dadurch  $V_0$  den doppelten Wert annimmt. Unter Berücksichtigung der zuvor bestimmten Größen der Leitfähigkeit  $\frac{1}{\sigma_G} = 4500\Omega$ , der Spininjektionseffizienz  $P = 14,5\%$  und einer verwendeten Stromdichte  $j = \frac{I}{W} = \frac{10\mu A}{3\mu m}$  kann als zentrales Ergebnis der Spin-Hall-Winkel berechnet werden. Dieser liegt für  $\lambda_s = 0,78\mu m$  aus den Hanlemessungen bzw. für  $\lambda_s = 0,5\mu m$  aus den Spin-Hall-Messungen zwischen  $\gamma_{SHE} = 0,07$  und  $\gamma_{SHE} = 0,11$ . Dieses Ergebnis steht im Einklang mit dem Experiment zur Messung des Spin-Hall-Effekts in nicht-lokaler Geometrie nach Balakrishnan *et al.*, bei dem in nicht-lokaler H-Geometrie durch Hanlepräzession ein Spin-Hall-Winkel von  $\gamma_{SHE} = 0,18$  ermittelt wurde [105]. Somit scheint es plausibel, dass in Abbildung 7.8 der Spin-Hall-Effekt in Graphen direkt mit ferromagnetischen Elektroden gemessen wurde.

### 7.3. Probe G: Verifikation des Spin-Hall-Effekts durch nicht-lokale Messungen

Um auszuschließen, dass es sich bei den gemessenen Daten aus dem vorherigen Kapitel 7.2 um ein anderes physikalisches Phänomen als den Spin-Hall-Effekt handelt, wurde nun noch das Transportverhalten in einer nicht-lokalen H-Geometrie untersucht. Die dafür verwendete Probe G wurde dabei gemeinsam mit Probe F fabriziert. Auf ihr befinden sich zwei Abgriffe für die nicht-lokale Spannung, die vom zentralen Strompfad jeweils  $L = 2,5\mu\text{m}$  und  $L = 3,5\mu\text{m}$  entfernt sind. Die Breite des Strompfades beträgt dabei  $W = 1\mu\text{m}$  (vgl. Abbildung 7.3).



**Abbildung 7.9:** Probe G: Messung des Schichtwiderstandes und die theoretischen Werte des ohmschen Signals. Für die Geometriefaktoren 2,5 und 3,5 erwartet man nur einen sehr geringen Widerstandswert in der H-Geometrie.

Der linke Graph in Abbildung 7.9 zeigt die Schichtwiderstände abhängig von der Backgatespannung bei verschiedenen Temperaturen. Es handelt sich hier nicht um eine echte Vierpunktmessung. Die Spannung wurde an zwei Hallpaaren gemessen, während der Strompfad an den jeweils gegenüberliegenden Hallästen angelegt wurde (vgl. Inset im linken Graphen in Abbildung 7.9). In erster Näherung liefert diese Methode den gleichen Widerstandswert wie eine gewöhnliche Vierpunktmessung mit exakt parallelem Stromfluss in der Hallbar.

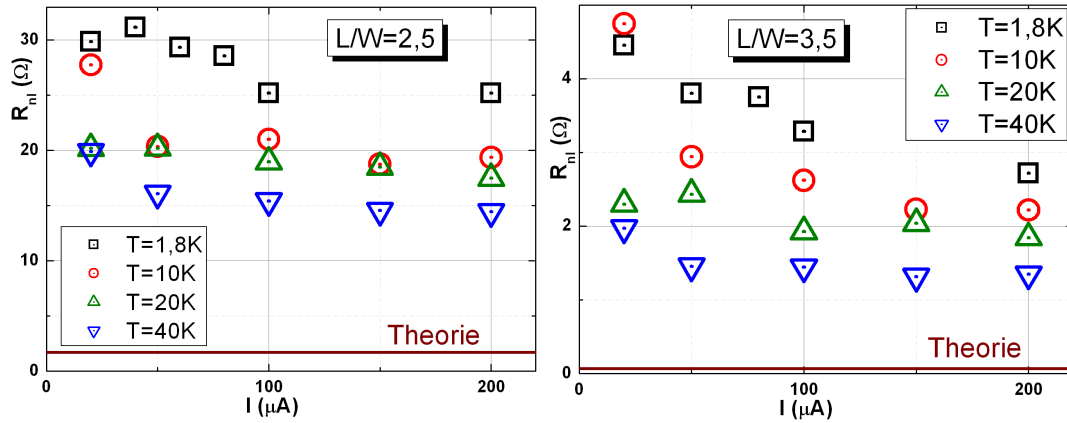
Auffällig an der Dirackurve ist zunächst, ähnlich wie bei Probe F, die starke p-Dotierung. Der Diracpunkt liegt hier bei ungefähr  $V_{bg} = +76\text{V}$ . Die Beweglichkeit liegt mit knapp  $\mu = 1700\text{cm}^2/\text{Vs}$  deutlich höher als bei Probe F. Die Höhe der Diracpunkte sollte mit zunehmender Temperatur sinken, was zumindest auf die Messdaten für  $T = 10\text{K}$ ,  $T = 20\text{K}$  und  $T = 40\text{K}$  zutrifft.



Aus der Bestimmung des Schichtwiderstandes  $\rho$  in der Graphenprobe kann man gemäß der Formel [105]

$$R_{ohm} = \rho e^{-\pi L/W} \quad (7.5)$$

den ohmschen Beitrag  $R_{ohm}$  berechnen, den ein Strom in dieser Konfiguration in den nicht-lokalen Bereichen verursachen würde. Die theoretisch erwarteten Ergebnisse sind im rechten Graphen in Abbildung 7.9 gezeigt. Die Maxima der ohmschen Beiträge liegen am Diracpunkt für  $L/W = 2,5$  bei  $R_{ohm}^{2,5} = 1,7\Omega$  und für  $L/W = 3,5$  bei  $R_{ohm}^{3,5} = 0,07\Omega$ . Sollte der Spin-Hall-Effekt in dieser Probe existieren, so würde bei einem Stromfluss ein Spinstrom senkrecht dazu entstehen. Im nächsten Hall-Ast könnte dieser Spinstrom aufgrund des inversen Spin-Hall-Effekts einen wiederum senkrecht dazu stehenden Ladungsstrom erzeugen, was zu einem Widerstand führen würde, der deutlich höher als  $R_{ohm}^{2,5} = 1,7\Omega$  bzw.  $R_{ohm}^{3,5} = 0,07\Omega$  läge.



**Abbildung 7.10:** Probe G: Temperatur- und Stromabhängigkeit des ohmschen Signals. Die gemessenen, nicht-lokalen Widerstände liegen deutlich über den theoretisch erwarteten Werten. Dies ist ein indirekter Beweis dafür, dass der Spin-Hall-Effekt in mit Wasserstoff angereicherten Graphenproben existiert.

Die Graphen in Abbildung 7.10 zeigen solche Widerstandsmessungen für die beiden Geometriefaktoren bei unterschiedlichen Strömen durch die Probe bei verschiedenen Temperaturen. Für beide Geometriefaktoren liegen die nicht-lokalen Widerstände deutlich über den theoretisch erwarteten Werten. Für  $L/W = 2,5$  betragen sie zwischen  $14\Omega$  und  $31\Omega$  (entspricht einer 8- bis 18-fachen Erhöhung) und für  $L/W = 3,5$  betragen sie zwischen  $1,3\Omega$  und  $4,7\Omega$  (entspricht einer 19- bis 68-fachen Erhöhung). Dies ist ein weiteres Indiz für den Spin-Hall-Effekt in mit Wasserstoff angereichertem Graphen.

Weiterhin fällt bei der Betrachtung der Messdaten aus Abbildung 7.10 auf, dass die nicht-lokalen Widerstände mit zunehmender Temperatur und steigender Stromstärke abnehmen. Das Temperaturverhalten ist dabei für Graphen nicht unüblich

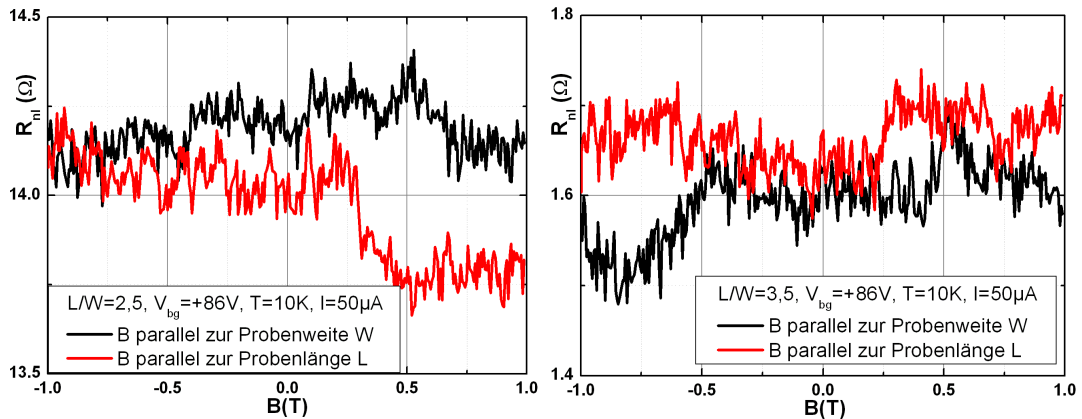


und ist auch in der Vierpunktmessung in Abbildung 7.9 ansatzweise zu erkennen. Die fallenden Widerstandswerte bei zunehmendem Stromfluss können dadurch erklärt werden, dass ein höherer Strom einen Heizeffekt auf die Probe bewirkt. Aus dem Vergleich der beiden Widerstände für die Geometriefaktoren  $L/W = 2,5$  und  $L/W = 3,5$  kann man die Spindiffusionslänge  $\lambda_s$  abschätzen. Geht man davon aus, dass die Höhe eines nicht-lokalen Widerstandsignals in erster Linie durch einen exponentiellen Abfall  $R_{nl} = \text{const.} \cdot \exp[-L/\lambda_s]$  bestimmt wird (vgl. Gleichung 6.7), so gilt für den Quotienten

$$\frac{R_{nl}^{2,5}}{R_{nl}^{3,5}} = \frac{\exp[-2,5\mu m/\lambda_s]}{\exp[-3,5\mu m/\lambda_s]} = \exp[1\mu m/\lambda_s]. \quad (7.6)$$

Unter Einbezug der Ergebnisse aus den Graphen von Abbildung 7.10 gilt für diesen Quotienten  $\frac{R_{nl}^{2,5}}{R_{nl}^{3,5}} \approx 10$ . Daraus resultiert unter Berücksichtigung von Gleichung 7.6 eine Spinrelaxationslänge von  $\lambda_s \approx 430\text{nm}$ . Dieses Ergebnis liegt in derselben Größenordnung wie die Spinrelaxationslänge  $\lambda_s = 496\text{nm}$ , die aus der direkten Messung des Spin-Hall-Effekts an der Probe F ermittelt wurde (vgl. Abbildung 7.8).

Ungeklärt bleibt die Frage nach der Hanlepräzession in der H-Geometrie. Sie konnte anhand Probe G nicht verifiziert werden, da eine Änderung des Magnetfeldes von bis zu einem Tesla keinen nennenswerten Einfluss auf die nicht-lokalen Widerstände bewirkte (vgl. Abbildung 7.11). Nichtsdestotrotz bilden die gemeinsamen Erkenntnisse aus den direkten und indirekten Messungen einen Beweis für die Existenz des Spin-Hall-Effekts in Graphen.



**Abbildung 7.11:** Probe G: Untersuchung der Spinpräzession in nicht-lokaler H-Geometrie. Bei den beiden Hallabgriffen mit den Geometriefaktoren  $L/W=2,5$  und  $L/W=3,5$  konnten im Magnetfeldbereich von bis zu einem Tesla keine hanleartigen Kurven festgestellt werden.

## 7.4. Zusammenfassung der Ergebnisse und Ausblick auf die direkte Messung des Spin-Hall-Effekts in Graphen

In diesem Kapitel wurde zunächst gezeigt, dass es bei einer Elektronenbelichtung einer mit HSQ-Lack bedeckten Graphenprobe zu einer Anlagerung von Wasserstoff kommt, die durch die Elektronendosis gesteuert werden kann. Transportmessungen belegen, dass dieser Prozess unmittelbare Auswirkungen auf die elektronischen Eigenschaften des Graphens, nämlich eine hohe p-Dotierung und eine geringe Beweglichkeit, zur Folge hat.

Die AMR-Analyse der verwendeten Cobaltstreifen hat gezeigt, dass diese für die Spininjektion grundsätzlich geeignet sind. Entscheidendes Kriterium für eine erfolgreiche Messung des Spin-Hall-Effekts ist hierbei die magnetische Stabilität entlang der Streifen bei Anlegen eines Feldes senkrecht dazu.

Weiterhin konnten Spin-Ventil- und Hanlepräzessionsmessungen durchgeführt werden, um den Spintransport im Graphen zu bestätigen. Die quantitative Analyse der out-of-plane-Hanlemessungen liefert dabei plausible Werte für die Spinrelaxationslänge und die Spininjektionseffizienz der verwendeten  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tunnelbarrieren. Die Durchführung der in-plane-Hanlemessung hingegen beweist, dass sich der Spin der Ladungsträger so rotieren lässt, wie es für die direkte Messung des Spin-Hall-Effekts in dieser Probengeometrie nötig ist. Letzterer wurde schließlich erfolgreich mit einem ferromagnetischen Streifen beobachtet. Der ermittelte Spin-Hall-Winkel liegt dabei in der gleichen Größenordnung bei Experimenten in einer H-Geometrie ohne ferromagnetische Kontakte [105]. Abschließend wurde die direkte Messung des Spin-Hall-Effekts durch indirekte Messungen verifiziert.

Allerdings bietet das Experiment zur direkten Messung des Spin-Hall-Effekts in Graphen noch etlichen Raum für Verbesserung. Bei Probe F wurde zum Beispiel die Beweglichkeit nur mittels einer Zweipunktmessung abgeschätzt. Hier wäre eine Vierpunktmessung mit wohldefinierter Probengeometrie besser geeignet.

Die Stabilität der ferromagnetischen Streifen bei Erhöhung des Magnetfeldes in  $\hat{y}$ -Richtung ist nur bis etwa 50mT gewährleistet. Hier könnte eine Verbesserung erzielt werden, wenn anstatt Cobalt Dysprosium verwendet wird, da dieses Material eine relativ hohe Sättigungsmagnetisierung aufweist.

Auch wurden die hier vorgestellten Ergebnisse der direkten Messung des Spin-Hall-Effekts bei  $T = 196\text{K}$  durchgeführt. Hier würden temperaturabhängige Untersuchungen mehr Rückschlüsse auf den Spintransport in Graphen zulassen.

Nichtsdestotrotz erbringen die hier vorgestellten Experimente den Beweis, dass der Spin-Hall-Effekt in hydrogenierten Graphenstrukturen tatsächlich existiert. Die Erkenntnisse aus diesen Messungen tragen somit zu einem besseren Verständnis des Spintransports in Graphen bei.

# A. Prozessdokumentation und detaillierte Probenherstellung

## A.1. Proben aus Kapitel 3.2.1 zur Untersuchung der Prozessoptimierung der Atomlagenabscheidung auf Graphen

- Herausbrechen der Si-Chips aus dem Wafer. Verwendet wurden 4,5mm mal 4,5mm große, p-dotierte Si-Chips mit einer 285nm dicken SiO<sub>2</sub>-Schicht.
- Reinigung der Si-Chips und Entfernen der Lackschutzschicht mit Aceton im Ultraschallbecken, abspülen mit Aceton und Isopropanol, Trocknen mit N<sub>2</sub>-Druckluft.
- Fünfminütige Reinigung im Plasmaverascher mit Sauerstoffplasma bei einem Druck von  $p = 1 - 2\text{mbar}$  und Leistung  $P = 30\%$ .
- Aufbringen von Naturgraphit bzw. HOPG durch mikromechanische Exfoliation mit Scotch Magic Tape.
- Untersuchung der Probe unter dem Lichtmikroskop und Identifikation der Graphenstrukturen.
- Aufschleudern von PMMA-950k (4%) in 2 Stufen:
  - 1. Stufe:  $U = 3000 \frac{\text{Umdrehungen}}{\text{Minute}}$ , Beschleunigung 0,  $t = 5\text{s}$ .
  - 2. Stufe:  $U = 8000 \frac{\text{Umdrehungen}}{\text{Minute}}$ , Beschleunigung 5,  $t = 30\text{s}$ .8 Minuten lang Ausbacken auf einer Heizplatte mit  $T = 150^\circ\text{C}$ .
- ESL für den Ätzprozess mit einer Flächendosis von  $270 \frac{\mu\text{C}}{\text{cm}^2}$  bei einer Beschleunigungsspannung von 25 kV.
- Entwickeln in MIBK/Isopropanol (Verhältnis 1:3) für 90 Sekunden, anschließendes Schwenken in Isopropanol für maximal 30 Sekunden, Trocknen mit N<sub>2</sub>-Druckluft.
- Ätzen in der Plasmalab80Plus RIE-Ätzanlage mit 100sccm Sauerstoffionen,  $p = 27\text{ mTorr}$ ,  $P = 50\text{W}$  bei  $U \approx 80\text{V}$ ,  $t = 20\text{s}$ .
- Entfernen der Lackrückstände mit Aceton und Isopropanol.
- Aufschleudern von PMMA-950k (4%) in 2 Stufen:

- 1. Stufe:  $U = 3000 \frac{\text{Umdrehungen}}{\text{Minute}}$ , Beschleunigung 0,  $t = 5s$ .
  - 2. Stufe:  $U = 8000 \frac{\text{Umdrehungen}}{\text{Minute}}$ , Beschleunigung 5,  $t = 30s$ .
- 8 Minuten lang Ausbacken auf einer Heizplatte mit  $T = 150^\circ C$ .
- ESL zum Schreiben der elektrischen Kontakte am Graphen mit einer Flächendosis von  $500 \frac{\mu C}{cm^2}$  bei einer Beschleunigungsspannung von 30kV.
  - Entwickeln in MIBK/Isopropanol (Verhältnis 1:3) für 90 Sekunden, anschließendes Schwenken in Isopropanol für maximal 30 Sekunden, Trocknen mit N<sub>2</sub>-Druckluft.
  - Aufdampfen von 40-60nm Palladium in der UNIVEX B mit E-Gun, Strom  $I = 35mA$  bei  $U = 8kV$ , Rate=  $1,0 \frac{Å}{s}$ , Basisdruck  $p = 3 \cdot 10^{-7} mbar$ .
  - Lift-Off in Aceton auf Heizplatte mit  $T = 60^\circ C$ , dann vorsichtig mit Aceton abspritzen, in Isopropanol legen, anschließend mit N<sub>2</sub>-Druckluft trocknen.
  - Einlegen und Schwenken in Chloroform für mindestens eine Minute, Abspülen mit Propanol.
  - Aufdampfen von 0,8 nm Aluminium im Ultrahochvakuum  $p \approx 2 \cdot 10^{-9} mbar$  bei gekühltem Probenhalter  $T \approx -120^\circ K$  und anschließende Oxidation in reiner Sauerstoffatmosphäre für mindestens eine Stunde.
  - Aufbringen von 25nm Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> mittels Savannah100 Atomic Layer Deposition, purge=5sec., flow=20sccm, Basisdruck 0,5Torr, Temperatur der Probenkammer:  $T = 250^\circ C$ , Pulsdauern TMA/H<sub>2</sub>O: 5sec.
  - Einkleben in den Chip-Carrier mit zweikomponentigen Leitsilber, auf 100°C Heizplatte mindestens 15 Minuten trocknen, dann bonden.

## A.2. Proben mit strukturierten Topgates aus Kapitel 5

Für die Herstellung der Proben mit strukturierten Topgates wurden im Allgemeinen die gleichen Arbeitsschritte wie für die Fabrikation der vorher beschriebenen Probe zur Untersuchung der Prozessoptimierung der Atomlagenabscheidung durchgeführt. Details, welche in erster Linie die Herstellung des Topgatedielektrikums betreffen, können direkt bei der Auswertung in Kapitel 5 nachgelesen werden. Für die Herstellung des Topgates bedarf es vor dem Einkleben in den Chip-Carrier bis zu zweier weiterer ESL-Schritte, die für säulenartige und linienartige Topgates unterschiedlich sind.

### A.2.1. Proben mit säulenartigen Topgates

- Aufschleudern von PMMA-950k (4%) als untere Lackschicht in 2 Stufen:

- 1. Stufe:  $U = 3000 \frac{\text{Umdrehungen}}{\text{Minute}}$ , Beschleunigung 0,  $t = 5s$ .
- 2. Stufe:  $U = 8000 \frac{\text{Umdrehungen}}{\text{Minute}}$ , Beschleunigung 5,  $t = 30s$ .

8 Minuten lang Ausbacken auf einer Heizplatte mit  $T = 150^\circ C$ .

- Aufschleudern von PMMA/MA (8%) mit  $U = 3000 \frac{\text{Umdrehungen}}{\text{Minute}}$ , Beschleunigung 0,  $t = 100s$ , 8 Minuten lang Ausbacken auf einer Heizplatte mit  $T = 150^\circ C$ .
- ESL zum Schreiben der Säulenstruktur mit einer Punktdosis von 22fC, gleichzeitige Belichtung der Zuleitungen zum Topgate mit  $280 \frac{\mu C}{cm^2}$  bei Beschleunigungsspannung 25kV.
- Vorsputtern mit Ar-Ionen, Aufdampfen von 10nm Chrom und 270nm Gold in der UNIVEX A mittels thermischer Verdampferquellen,  $I = 120 - 140A$ , Rate =  $1,0 - 2,0 \frac{\text{\AA}}{s}$ , Basisdruck  $p = 5 \cdot 10^{-6} mbar$ .

### A.2.2. Proben mit linienartigen Topgates

- Aufschleudern von PMMA-950k (2%) in 2 Stufen:
  - 1. Stufe:  $U = 3000 \frac{\text{Umdrehungen}}{\text{Minute}}$ , Beschleunigung 0,  $t = 5s$ .
  - 2. Stufe:  $U = 8000 \frac{\text{Umdrehungen}}{\text{Minute}}$ , Beschleunigung 5,  $t = 30s$ .
 6 Minuten lang Ausbacken auf einer Heizplatte mit  $T = 150^\circ C$ .
- ESL zum Schreiben des Liniengitters mit einer Liniendosis zwischen  $800 \frac{pC}{cm}$  und  $1000 \frac{pC}{cm}$  bei einer Beschleunigungsspannung von 30kV.
- Entwickeln in MIBK/Isopropanol (Verhältnis 1:3) für 20 Sekunden, anschließendes Schwenken in Isopropanol für maximal 45 Sekunden, Trocknen mit N<sub>2</sub>-Druckluft.
- Aufdampfen von 20nm Palladium in der UNIVEX B mit E-Gun,  $I = 35mA$  bei  $U = 8kV$ , Rate =  $1,0 \frac{\text{\AA}}{s}$ , Basisdruck  $p = 3 \cdot 10^{-7} mbar$  oder Aufdampfen von 20nm Au<sub>60</sub>Pd<sub>40</sub> in der UNIVEX A mit thermischer Verdampferquelle,  $I = 90A$ , Rate =  $1,0 \frac{\text{\AA}}{s}$ , Basisdruck  $p = 5 \cdot 10^{-6} mbar$ .
- Lift-Off in Aceton auf Heizplatte mit  $T = 60^\circ C$ , dann vorsichtig mit Aceton abspritzen, in Isopropanol legen, anschließend mit N<sub>2</sub>-Druckluft trocknen.
- Aufschleudern von PMMA-950k (4%) in 2 Stufen:
  - 1. Stufe:  $U = 3000 \frac{\text{Umdrehungen}}{\text{Minute}}$ , Beschleunigung 0,  $t = 5s$ .
  - 2. Stufe:  $U = 8000 \frac{\text{Umdrehungen}}{\text{Minute}}$ , Beschleunigung 5,  $t = 30s$ .
 8 Minuten lang Ausbacken auf einer Heizplatte mit  $T = 150^\circ C$ .
- ESL zum Schreiben der elektrischen Ankontaktierung der einzelnen Topgatestreifen mit einer Flächendosis von  $500 \frac{\mu C}{cm^2}$  bei einer Beschleunigungsspannung von 30kV.

- Entwickeln in MIBK/Isopropanol (Verhältnis 1:3) für 90 Sekunden, anschließendes Schwenken in Isopropanol für maximal 30 Sekunden, Trocknen mit N<sub>2</sub>-Druckluft.
- Aufdampfen von 5nm Chrom und 60nm Gold in der UNIVEX A mittels thermischer Verdampferquellen,  $I = 120 - 140A$ ,  $\text{Rate} = 1,0 \frac{\text{\AA}}{s}$ , Basisdruck  $p = 5 \cdot 10^{-6} \text{mbar}$ .
- Lift-Off in Aceton auf Heizplatte mit  $T = 60^\circ C$ , dann vorsichtig mit Aceton abspritzen, in Isopropanol legen, anschließend mit N<sub>2</sub>-Druckluft trocknen.

### A.3. Proben zur Untersuchung des Spin-Hall-Effekts aus Kapitel 7

- Herausbrechen der Si-Chips aus dem Wafer. Verwendet wurden 4,5mm mal 4,5mm große, p-dotierte Si-Chips mit einer 285nm dicken SiO<sub>2</sub>-Schicht.
- Reinigung der Si-Chips und Entfernen der Lackschutzschicht mit Aceton im Ultraschallbecken, abspülen mit Aceton und Isopropanol, Trocknen mit N<sub>2</sub>-Druckluft.
- Fünfminütige Reinigung im Plasmaverascher mit Sauerstoffplasma bei einem Druck von  $p = 1 - 2 \text{mbar}$  und Leistung  $P = 30\%$ .
- Aufbringen von HOPG durch mikromechanische Exfoliation mit Scotch Magic Tape.
- Untersuchung der Probe unter dem Lichtmikroskop und Identifikation der Graphenstrukturen.
- Aufschleudern von PMMA-950k (4%) in 2 Stufen:
  - 1. Stufe:  $U = 3000 \frac{\text{Umdrehungen}}{\text{Minute}}$ , Beschleunigung 0,  $t = 5s$ .
  - 2. Stufe:  $U = 8000 \frac{\text{Umdrehungen}}{\text{Minute}}$ , Beschleunigung 5,  $t = 30s$ .
- 8 Minuten lang Ausbacken auf einer Heizplatte mit  $T = 150^\circ C$ .
- ESL für den Ätzprozess mit einer Flächendosis von  $270 \frac{\mu C}{\text{cm}^2}$  bei einer Beschleunigungsspannung von 30 kV.
- Entwickeln in MIBK/Isopropanol (Verhältnis 1:3) für 90 Sekunden, anschließendes Schwenken in Isopropanol für maximal 30 Sekunden, Trocknen mit N<sub>2</sub>-Druckluft.
- Ätzen in der Plasmalab80Plus RIE-Ätzanlage mit 50% Sauerstoff- und 50% Argonplasma, Fluss=100sccm,  $p = 27 \text{ mTorr}$ ,  $P = 50W$  bei  $U \approx 80V$ ,  $t = 20s$ .
- Entfernen der Lackrückstände mit Aceton und Isopropanol.
- Aufschleudern von PMMA-950k (4%) in 2 Stufen:

- 1. Stufe:  $U = 3000 \frac{\text{Umdrehungen}}{\text{Minute}}$ , Beschleunigung 0,  $t = 5s$ .
- 2. Stufe:  $U = 8000 \frac{\text{Umdrehungen}}{\text{Minute}}$ , Beschleunigung 5,  $t = 30s$ .

8 Minuten lang Ausbacken auf einer Heizplatte mit  $T = 150^\circ C$ .

- ESL zum Schreiben der lokalen Tunnelbarrieren und der Cobaltstreifen auf Graphen mit einer Flächendosis von  $500 \frac{\mu C}{cm^2}$  bei einer Beschleunigungsspannung von 30kV.
- Entwickeln in MIBK/Isopropanol (Verhältnis 1:3) für 90 Sekunden, anschließendes Schwenken in Isopropanol für maximal 30 Sekunden, Trocknen mit N<sub>2</sub>-Druckluft.
- Aufdampfen von 0,8 nm Aluminium im Ultrahochvakuum  $p \approx 2 \cdot 10^{-9} mbar$  bei gekühltem Probenhalter  $T \approx -90^\circ K$  und anschließende Oxidation in reiner Sauerstoffatmosphäre für mindestens zwei Stunden.
- Aufdampfen von 20nm Cobalt und 3nm Gold (als Oxidationsschutzschicht) in der UNIVEX A mittels thermischer Verdampferquellen,  $I = 100 - 120A$ , Rate =  $0,5 \frac{\text{\AA}}{s}$ , Basisdruck  $p = 5 \cdot 10^{-6} mbar$ .
- Lift-Off in Aceton auf Heizplatte mit  $T = 60^\circ C$ , dann vorsichtig mit Aceton abspritzen, in Isopropanol legen, anschließend mit N<sub>2</sub>-Druckluft trocknen.
- Aufschleudern von PMMA-950k (4%) in 2 Stufen:
  - 1. Stufe:  $U = 3000 \frac{\text{Umdrehungen}}{\text{Minute}}$ , Beschleunigung 0,  $t = 5s$ .
  - 2. Stufe:  $U = 8000 \frac{\text{Umdrehungen}}{\text{Minute}}$ , Beschleunigung 5,  $t = 30s$ .

8 Minuten lang Ausbacken auf einer Heizplatte mit  $T = 150^\circ C$ .

- ESL zum Schreiben der elektrischen Kontakte am Graphen mit einer Flächendosis von  $500 \frac{\mu C}{cm^2}$  bei einer Beschleunigungsspannung von 30kV.
- Aufdampfen von 3nm Chrom aus thermischer Verdampferquelle und 60nm Palladium (E-Gun) in der UNIVEX A.
- Lift-Off in Aceton auf Heizplatte mit  $T = 60^\circ C$ , dann vorsichtig mit Aceton abspritzen, in Isopropanol legen, anschließend mit N<sub>2</sub>-Druckluft trocknen.
- Aufschleudern des HSQ-Lacks Dow Corning XR-1541 in 2 Stufen:
  - 1. Stufe:  $U = 3000 \frac{\text{Umdrehungen}}{\text{Minute}}$ , Beschleunigung 0,  $t = 5s$ .
  - 2. Stufe:  $U = 6000 \frac{\text{Umdrehungen}}{\text{Minute}}$ , Beschleunigung 5,  $t = 30s$ .

8 Minuten lang Ausbacken auf einer Heizplatte mit  $T = 150^\circ C$ .

- Belichten des HSQ-Lackes mittels ESL mit einer Dosis von  $4000 \frac{\mu C}{cm^2}$  bei einer Beschleunigungsspannung von 30kV.
- Einkleben in den Chip-Carrier mit zweikomponentigem Leitsilber, auf  $100^\circ C$  Heizplatte mindestens 15 Minuten trocknen, dann bonden.





# Literaturverzeichnis

- [1] R. SAITO, G. DRESSELHAUS, M. S. DRESSELHAUS: *Physical Properties of Carbon Nanotubes*, Imperial College Press (1999).
- [2] W. DEMTRÖDER: *Experimentalphysik 3 - Atome, Moleküle und Festkörper*, Springer-Verlag (1996).
- [3] H. HAKEN, H. C. WOLF: *Atom- und Quantenphysik: Einführung in die experimentellen und theoretischen Grundlagen*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 8. Auflage (2004).
- [4] B. TRAUZETTEL: *Von Graphit zu Graphen*, Physik Journal **6**, S. 39-44 (2007).
- [5] S. LATIL, L. HENRARD: *Charge Carriers in Few-Layer Graphene Films*, Phys. Rev. Lett. **97**, 036803 (2006).
- [6] P. R. WALLACE: *The Band Theory of Graphite*, Physical Review Vol. **71** (1947).
- [7] N. M. R. PERES: *The transport properties of graphene*, J. Phys.: Condens. Matter **21**, 323201 (2009).
- [8] J. C. SLONCZEWSKI, P. R. WEISS: *Band Structure of Graphite*, Phys. Rev. **109**, 272 (1958).
- [9] A. K. GEIM, K. S. NOVOSELOV: *The Rise of Graphene*, Nature Materials **6**, S. 183-190 (2007).
- [10] S. HUNKLINGER: *Festkörperphysik*, Oldenbourg Verlag, 3. Auflage, S. 374-379 (2007).
- [11] M. I. KATSNELSON: *Graphene: carbon in two dimensions*, Materials Today **10**, S. 20-27 (2007).
- [12] F. D. M. HALDANE: *Model for a Quantum Hall Effect without Landau Levels: Condensed-Matter Realization of the "Parity Anomaly"*, Phys. Rev. Lett. **61**, S. 2015-2018 (1988).
- [13] K. S. NOVOSELOV, A. K. GEIM, S. V. MOROZOV, D. JIANG, Y. ZHANG, S. V. DUBONOS, I. V. GRIGORIEVA, A. A. FIRSOV: *Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Films*, Science **306**, S. 666-669 (2004).
- [14] E. FRADKIN: *Critical behavior of disordered degenerate semiconductors. I. Models, symmetries, and formalism*, Phys. Rev. B **33**, S. 3257-3262 (1986).

- [15] J. MARTIN, N. AKERMAN, G. ULBRICHT, T. LOHMANN, J. H. SMET, K. VON KLITZING, A. YACOBY: *Observation of electron-hole puddles in graphene using a scanning single-electron transistor*, Nature Physics **4**, S. 144-148 (2008).
- [16] O. KLEIN: *Die Reflexion von Elektronen an einem Potentialsprung nach der relativistischen Dynamik von Dirac.*, Zeitschrift für Physik **53**, S. 157-165 (1929).
- [17] F. SCHWABL: *Quantenmechanik für Fortgeschrittene*, 4. Auflage Springer Berlin Heidelberg New York, (2005).
- [18] M. I. KATSNELSON, K. S. NOVOSELOV, A. K. GEIM: *Chiral tunneling and the Klein paradox in graphene*, Nature Physics **5** , S. 620-625 (2009).
- [19] M. I. KATSNELSON, K. S. NOVOSELOV: *Graphene: New bridge between condensed matter physics and quantum electrodynamics*, Solid state Comm. **143** , S. 3-13 (2007).
- [20] V. V. CHEIANOV, V. FAL'KO, B. L. ALTSHULER: *The Focusing of Electron Flow and Veselago Lens in Graphene  $p - n$  Junctions*, Science **315** , S. 1252-1255 (2007).
- [21] V. V. CHEIANOV, V. I. FAL'KO: *Selective transmission of Dirac electrons and ballistic magnetoresistance of  $n - p$  junctions in graphene*, Phys. Rev. B **74** , 041403(R) (2006).
- [22] R. V. GORBACHEV, A. S. MAYOROV, A. K. SAVCHENKO, D. W. HORSELL, F. GUINEA: *Conductance of  $p$ - $n$ - $p$  graphene structures with 'air-bridge' top gates*, Nano Lett. **8**, S. 1995-1999 (2008).
- [23] L. M. ZHANG, M. M. FOGLER: *Nonlinear screening and ballistic transport in a graphene  $p - n$  junction*, Phys. Rev. Lett. **100**, 116804 (2008).
- [24] A. V. SHYTOV, M. S. RUDNER, L. S. LEVITOV: *Klein Backscattering and Fabry-Pérot Interference in Graphene Heterojunctions*, Phys. Rev. Lett. **101**, 156804 (2008).
- [25] A. F. YOUNG, P. KIM: *Quantum interference and Klein tunneling in graphene heterojunctions*, Nature Physics **5**, S.222-226 (2009).
- [26] A. ISACSSON, L. M. JONSSON, J. M. KINARET, M. JONSON: *Electronic superlattices in corrugated graphene*, Phys. Rev. B **77**, 035423 (2008).
- [27] J. XUE, J. SANCHEZ-YAMAGISHI, D. BULMASH, P. JACQUOD, A. DESHPANDE, K. WATANABE, T. TANIGUCHI, P. JARILLO-HERRERO, B. J. LEROY: *Scanning tunneling microscopy and spectroscopy of ultra-flat graphene on hexagonal boron nitride*, Nature Materials **10**, S. 282-285 (2011).
- [28] S. DUBEY, V. SINGH, A. K. BHAT, P. PARIKH, S. GROVER, R. SENARMA, V. TRIPATHI, K. SENGUPTA, M. M. DESHMUKH: *Tunable Superlattice in Graphene To Control the Number of Dirac Points*, Nano Lett. **13**, S. 3990-3995 (2013).

- [29] L. BREY, H. A. FERTIG: *Emerging Zero Modes for Graphene in a Periodic Potential*, Phys. Rev. Lett. **103**, 046809 (2009).
- [30] M. BARBIER, P. VASILOPOULOS, F. M. PEETERS: *Extra Dirac points in the energy spectrum for superlattices on single-layer graphene*, Phys. Rev. B **81**, 075438 (2010).
- [31] M. BARBIER, F. M. PEETERS, P. VASILOPOULOS, J. M. PEREIRA JR.: *Dirac and Klein-Gordon particles in one-dimensional periodic potentials*, Phys. Rev. B **77**, 115446 (2008).
- [32] N. ABEDPOUR, A. ESMAILPOUR, R. ASGARI, M. R. R. TABAR: *Conductance of a disordered graphene superlattice*, Phys. Rev. B **79**, 165412 (2009).
- [33] X.-X. GUO, D. LIU, Y.-X. LI: *Conductance and shot noise in graphene superlattice*, APL **98**, 242101 (2011).
- [34] C.-H. PARK, L. YANG, Y.-W. SON, M. L. COHEN, S. G. LOUIE: *Anisotropic behaviours of massless Dirac fermions in graphene under periodic potentials*, Nature Physics **4**, S. 213-217 (2008).
- [35] E. H. HALL: *On a New Action of the Magnet on Electric Currents*, American Journal of Mathematics Vol. **2**, No. 3, S. 287-292 (1879).
- [36] G. CZYCHOLL: *Theoretische Festkörperphysik*, Springer Verlag, 2. Auflage, S. 190-195 (2004).
- [37] S. DATTA: *Electronic Transport in Mesoscopic Systems*, Cambridge University Press, S. 23 ff. (1995).
- [38] S. HUNKLINGER: *Festkörperphysik*, Oldenbourg Verlag, 2. Auflage, S. 349-374 (2007).
- [39] K. V. KLITZING, G. DORDA, M. PEPPER: *New Method for High-Accuracy Determination of the Fine-Structure Constant Based on Quantized Hall Resistance*, Phys. Rev. Lett. **45** No. 6, S. 494-497 (1980).
- [40] K. S. NOVOSELOV, A. K. GEIM, S. V. MOROZOV, D. JIANG, M. I. KATSNELSON, I. V. GRIGORIEVA, S. V. DUBONOS, A. A. FIRSOV: *Two-dimensional gas of massless Dirac fermions in graphene*, Nature **438**, S. 197-200 (2005).
- [41] U. ZEITLER, J. GIESBERS, J.-K. MAAN: *Quanten-Hall-Effekt in Graphen*, Phys. Unserer Zeit **9**, S. 124-131 (2009).
- [42] V. P. GUSYNINI, S. G. SHARAPOV: *Unconventional Integer Quantum Hall Effect in Graphene*, Phys. Rev. Lett. **95**, 146801 (2005).
- [43] Y. ZHANG, Y. TAN, H. L. STORMER, P. KIM : *Experimental observation of the quantum Hall effect and Berry's phase in graphene*, Nature **438**, S. 201-204, (2005).

- [44] K. S. NOVOSELOV, , Z. JIANG, Y. ZHANG, S. V. MOROZOV, H. L. STORMER, U. ZEITLER , J. C. MAAN, G. S. BOEBINGER, P. KIM, A. K. GEIM: *Room-Temperature Quantum Hall Effect in Graphene*, Science **315**, S. 1379 (2007).
- [45] P. CARMIER, C. LEWENKOPF, D. ULLMO: *Semiclassical magnetotransport in graphene  $n - p$  junctions*, Phys. Rev. B **84**, 195428 (2011).
- [46] D. A. ABANIN, L. S. LEVITOV: *Quantized Transport in Graphene  $p - n$  Junctions in a Magnetic Field*, Science **317**, S. 641-643 (2007).
- [47] J. R. WILLIAMS, L. DICARLO, C. M. MARCUS: *Quantum Hall Effect in a Gate-Controlled  $p - n$  Junction of Graphene*, Science **317**, S. 638-641 (2007).
- [48] M. DRIENOVSKY: *Strukturierte Topgates auf Graphen mit  $\text{HfO}_2$  und  $\text{Al}_2\text{O}_3$  als Dielektrikum*, Diplomarbeit, Institut für Experimentelle und Angewandte Physik, Universität Regensburg (2013).
- [49] D.-K. KI, H.-J. LEE: *Quantum Hall resistance of a multiterminal top-gated graphene device*, Phys. Rev. B **79**, 195327 (2009).
- [50] N. GU, M. RUDNER, A. YOUNG, P. KIM, L. LEVITOV: *Collapse of Landau Levels in Gated Graphene Structures*, Phys. Rev. Lett. **106**, 066601 (2011).
- [51] C.-H. PARK, Y.-W. SON, L. YANG, M. L. COHEN, S. G. LOUIE: *Landau Levels and Quantum Hall Effect in Graphene Superlattices*, Phys. Rev. Lett. **103**, 046808 (2009).
- [52] D. WEISS, K. V. KLITZING, K. PLOOG, G. WEIMANN: *Magnetoresistance Oscillations in a Two-Dimensional Electron Gas Induced by a Submicrometer Periodic Potential*, Europhys. Lett. **8** (2), S. 179-184 (1989).
- [53] D. WEISS, M. L. ROUKES, A. MENSCHIG, P. GRAMBOW, K. V. KLITZING, G. WEIMANN: *Electron Pinball and Commensurate Orbits in a Periodic Array of Scatterers*, Phys. Rev. Lett. **66** No. 21 (1991).
- [54] A. MATULIS, F. M. PEETERS: *Appearance of enhanced Weiss oscillations in graphene: Theory*, Phys. Rev. B **75**, 125429 (2007).
- [55] R. NASIR, K. SABEEH, M. TAHIR: *Magnetotransport in a periodically modulated graphene monolayer*, Phys. Rev. B **81**, 085402 (2010).
- [56] M. TAHIR, K. SABEEH: *Weiss oscillations in the magnetoconductivity of modulated graphene bilayer*, arXiv:0804.4087 (2008).
- [57] C. W. J. BEENAKKER, H. VAN HOUTEN: *Quantum Transport in Semiconductor Nanostructures*, Solid State Physics **44**, 1 (1991).
- [58] F. V. TIKHONENKO, A. A. KOZIKOV, A. K. SAVCHENKO, R. V. GORBACHEV: *Transition between Electron Localization and Antilocalization in Graphene*, Phys. Rev. Lett. **103**, 226801 (2009).

- [59] F. V. TIKHONENKO, D. W. HORSELL, R. V. GORBACHEV, A. K. SAVCHENKO: *Weak Localization in Graphene Flakes*, Phys. Rev. Lett. **100**, 056802 (2008).
- [60] E. McCANN, K. KECHEDZHI, V. I. FAL'KO, H. SUZUURA, T. ANDO, B. L. ALTSHULER: *Weak-Localization Magnetoresistance and Valley Symmetry in Graphene*, Phys. Rev. Lett. **97**, 146805 (2006).
- [61] P. A. LEE, A. D. STONE: *Universal Conductance Fluctuations in Metals*, Phys. Rev. Lett. **55**, No. 15 (1985).
- [62] M. Y. KHARITONOV, K. B. EFETOV: *Universal conductance fluctuations in graphene*, Phys. Rev. B **78**, 033404 (2008).
- [63] K. KECHEDZHI, O. KASHUBA, V. I. FAL'KO: *Quantum kinetic equation and universal conductance fluctuations in graphene*, Phys. Rev. B **77**, 193403 (2008).
- [64] K. KECHEDZHI, D. W. HORSELL, F. V. TIKHONENKO, A. K. SAVCHENKO, R. V. GORBACHEV, I. V. LERNER, V. I. FAL'KO: *Quantum Transport Thermometry for electrons in Graphene*, Phys. Rev. Lett. **102**, 066801 (2009).
- [65] F.-X. SCHRETTENBRUNNER: *Untersuchungen von top-gates auf Graphen-Strukturen*, Diplomarbeit, Institut für Experimentelle und Angewandte Physik, Universität Regensburg (2010).
- [66] P. BLAKE, E. W. HILL, A. H. CASTRO NETO, K. S. NOVOSELOV, D. JIANG, R. YANG, T. J. BOOTH, A. K. GEIM: *Making graphene visible*, APL **91**, 063124 (2007).
- [67] R. L. PUURUNEN: *Surface chemistry of atomic layer deposition: A case study for the trimethylaluminum/water process*, J. Appl. Phys. **97**, 121301 (2005).
- [68] A. C. DILLON, A. W. OTT, J. D. WAY, S. M. GEORGE: *Surface chemistry of  $Al_2O_3$  deposition using  $Al(CH_3)_3$  and  $H_2O$  in a binary reaction sequence*, Surface Science **322**, S. 230-242 (1995).
- [69] F. H. YANG, R. T. YANG: *Ab initio molecular orbital study of adsorption of atomic hydrogen on graphite: Insight into hydrogen storage in carbon nanotubes*, Carbon **40**, S. 437-444 (2002).
- [70] D. KOCH: *High- $\kappa$  Dielektrika auf Graphen*, Diplomarbeit, Institut für Experimentelle und Angewandte Physik, Universität Regensburg (2011).
- [71] X. WANG, S. M. TABAKMAN, H. DAI: *Atomic Layer Deposition of Metal Oxides on Pristine and Functionalized Graphene*, J. Am. Chem. Soc. **130** (26), S. 8152-8153 (2008).
- [72] D. B. FARMER, R. G. GORDON: *Atomic Layer Deposition on Suspended Single-Walled Carbon Nanotubes via Gas-Phase Noncovalent Functionalization*, Nano Lett. **6** No. 4, S. 699-703 (2006).

- [73] S. KIM, J. NAH, I. JO, D SHAHRJERDI, L. COLOMBO, Z. YAO, E. TUTUC, S. K. BANERJEE: *Realization of a high mobility dual-gated graphene field-effect transistor with  $Al_2O_3$  dielectric*, APL **94**, 062107 (2009).
- [74] Z. CHENG, Q. ZHOU, C. WANG, Q. LI, C. WANG, Y. FANG: *Toward Intrinsic Graphene Surfaces: A Systematic Study on Thermal Annealing and Wet-Chemical Treatment on  $SiO_2$ -Supported Graphene Devices*, Nano Lett. **11**, S. 767-771 (2011).
- [75] L. J. VAN DER PAUW: *A method of measuring specific resistivity and Hall effect of discs of arbitrary shape*, Philips Res. Repts. **13** No. 1, S. 1-9 (1958).
- [76] E. C. PETERS, A. J. M. GIESBERS, U. ZEITLER, M. BURGHARD, K. KERN: *Valley-polarized massive charge carriers in gapped graphene*, Phys. Rev. B **87**, 201403(R) (2013).
- [77] N. STANDER, B. HUARD, D. GOLDBERGER-GORDON: *Evidence for Klein-Tunneling in Graphene  $p - n$  Junctions*, Phys. Rev. Lett. **102**, 026807 (2009).
- [78] J. B. OOSTINGA, H. B. HEERSCHKE, X. LIU, A. F. MORPURGO, L. M. K. VANDERSYPEN: *Gate-induced insulating state in bilayer graphene devices*, Nature Materials **7** No. 2, S. 151-157 (2007).
- [79] Y. ZHANG, T.-T. TANG, C. GIRIT, Z. HAO, M. C. MARTIN, A. ZETTL, M. F. CROMMIE, Y. R. SHEN, F. WANG: *Direct observation of a widely tunable bandgap in bilayer graphene*, Nature **495** (7248), S. 820-823 (2009).
- [80] Y.-B. ZHOU, B.-H. HAN, Z.-M. LIAO, H.-C. WU, D.-P. YU: *From positive to negative magnetoresistance in graphene with increasing disorder*, APL **98**, 222502 (2011).
- [81] S. CHO, M. S. FUHRER: *Charge transport and inhomogeneity near the minimum conductivity point in graphene*, Phys. Rev. B **77**, 081402(R) (2008).
- [82] M. DRIENOVSKY, F.-X. SCHRETTENBRUNNER, A. SANDNER, M.-H. LIU, F. TKATSCHENKO, K. RICHTER, D. WEISS, J. EROMS: *Towards superlattices: Lateral bipolar multibarriers in graphene*, arXiv:1401.1955 (2014).
- [83] N. F. MOTT: *The Electrical Conductivity of the Transition Metals*, Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences 153.880, S. 699-717. (1936).
- [84] P. C. VAN SON, H. VAN KEMPEN, P. WYDER: *Boundary Resistance of the Ferromagnetic-Nonferromagnetic Metal Interface*, Phys. Rev. Lett. **58**, No. 21 (1987).
- [85] G. SCHMIDT, D. FERRAND, L. W. MOLENKAMP, A. T. FILIP, B. J. VAN WEES: *Fundamental obstacle for electrical spin injection from a ferromagnetic metal into a diffusive semiconductor*, Phys. Rev. B **62**, No. 8 (2000).

- [86] A. FERT, H. JAFFRÈS: *Boundary Resistance of the Ferromagnetic-Nonferromagnetic Metal Interface*, Phys. Rev. B **64**, 184420 (2001).
- [87] M. CIORGA, A. EINWANGER, U. WURSTBAUER, D. SCHUH, W. WEGSCHEIDER, D. WEISS: *Electrical spin injection and detection in lateral all-semiconductor devices*, Phys. Rev. B **79**, 165321 (2009).
- [88] X. LOU, C. ADELMANN, S. A. CROOKER, E. S. GARLID, J. ZHANG, K. S. M. REDDY, S. D. FLEXNER, C. J. PALMSTRØM AND P. A. CROWELL: *Electrical detection of spin transport in lateral ferromagnet-semiconductor devices*, Nature Physics **3**, S. 197-202 (2007).
- [89] S. TAKAHASHI, S. MAEKAWA: *Spin injection and detection in magnetic nanostructures*, Phys. Rev. B **67**, 052409 (2003).
- [90] W. HAN, K. PI, K. M. MCCREARY, Y. LI, J. J. I. WONG, A. G. SWARTZ, R. K. KAWAKAMI: *Tunneling Spin Injection into Single Layer Graphene*, Phys. Rev. Lett. **105**, 167202 (2010).
- [91] D. PACHNIEWSKI: *Optimierung der Spininjektion in Graphen mit Hilfe von Tunnelbarrieren*, Diplomarbeit, Institut für Experimentelle und Angewandte Physik, Universität Regensburg (2011).
- [92] F. J. JEDEMA, H. B. HEERSCHE, A. T. FILIP, J. J. A. BASELMANS, B. J. VAN WEES: *Electrical detection of spin precession in a metallic mesoscopic spin valve*, Nature **416**, S. 713-716 (2002).
- [93] K. PI, W. HAN, K. M. MCCREARY, A. G. SWARTZ, Y. LI, R. K. KAWAKAMI: *Manipulation of Spin Transport in Graphene by Surface Chemical Doping*, Phys. Rev. Lett. **104**, 187201 (2010).
- [94] M. I. D'YAKONOV, V. I. PEREL: *Possibility of Orientating Electron Spins with Current*, Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters **13**, S. 467-469 (1971).
- [95] J. SCHLIEMANN: *Spin Hall Effect*, International Journal of Modern Physics B **20**, S. 1015-1036 (2006).
- [96] J. NITTA, T. AKAZAKI, H. TAKAYANAGI: *Gate Control of Spin-Orbit Interaction in an Inverted  $In_{0.53}Ga_{0.47}As/In_{0.52}Al_{0.48}As$  Heterostructure*, Phys. Rev. Lett **78**, No. 7 S. 1335-1338 (1997).
- [97] J. SINOVA, D. CULCER, Q. NIU, N. A. SINITSYN, T. JUNGWIRTH, A. H. MACDONALD: *Universal Intrinsic Spin Hall Effect*, Phys. Rev. Lett **92**, 126603 (2004).
- [98] H.-A. ENGEL, B. I. HALPERIN, E. I. RASHBA: *Theory of Spin Hall Conductivity in n-Doped GaAs*, Phys. Rev. Lett **95**, 166605 (2005).
- [99] N. F. MOTT, H. S. W. MASSEY: *The Theory of Atomic Collisions*, Oxford University Press, New York (1965).
- [100] L. BERGER: *Side-Jump Mechanism for the Hall Effect of Ferromagnets*, Phys. Rev. B **2**, No. 11 (1970).

- [101] Y. K. KATO, R. C. MYERS, A. C. GOSSARD, D. D. AWSCHALOM: *Observation of the Spin Hall Effect in Semiconductors*, Science **306**, S. 1910-1913 (2004).
- [102] D. HUERTAS-HERNANDO, F. GUINEA, A. BRATAAS: *Spin-orbit coupling in curved graphene, fullerenes, nanotubes, and nanotube caps*, Phys. Rev. B **74**, 155426 (2006).
- [103] D. A. ABANIN, R. V. GORBACHEV, K. S. NOVOSELOV, A. K. GEIM, L. S. LEVITOV: *Giant Spin-Hall Effect induced by Zeeman Interaction in Graphene*, Phys. Rev. Lett. **107**, 096601 (2011).
- [104] A. H. CASTRO NETO, F. GUINEA: *Impurity-Induced Spin-Orbit Coupling in Graphene*, Phys. Rev. Lett. **103**, 026804 (2009).
- [105] J. BALAKRISHNAN, G. K. W. KOON, M. JAISWAL, A. H. CASTRO NETO, B. ÖZYILMAZ: *Colossal enhancement of spin-orbit coupling in weakly hydrogenated graphene*, Nature Physics **9**, S. 284-287 (2013).
- [106] D. A. ABANIN, A. V. SHYTOV, L. S. LEVITOV, B. I. HALPERIN: *Nonlocal charge transport mediated by spin diffusion in the spin Hall effect regime*, Phys. Rev. B **79**, 035304 (2009).
- [107] M. EHLERT, C. SONG, M. CIORGA, M. UTZ, D. SCHUH, D. BOUGEARD, D. WEISS: *All-electrical measurements of direct spin Hall effect in GaAs with Esaki diode electrodes*, Phys. Rev. B **86**, 205204 (2012).
- [108] S. RYU, M. Y. HAN, J. MAULTZSCH, T. F. HEINZ, P. KIM, M. L. STEIGERWALD, L. E. BRUS: *Reversible Basal Plane Hydrogenation of Graphene*, Nano Lett. **8**, S. 4597-4602 (2008).
- [109] L. G. CANÇADO, A. JORIO, E. H. MARTINS FERREIRA, F. STAVALE, C. A. ACHETE, R. B. CAPAZ, M. V. O. MOUTINHO, A. LOMBARDO, T. S. KULMALA, AND A. C. FERRARI: *Quantifying Defects in Graphene via Raman Spectroscopy at Different Excitation Energies*, Nano Lett. **11**, S. 3190-3196 (2011).
- [110] B. BIRKNER: *Spintransport in Graphen*, Dissertation, Institut für Experimentelle und Angewandte Physik, Universität Regensburg (2013).



# Abbildungsverzeichnis

1.1. Vereinfachtes Modell zur globalen und lokalen Modulation der Ladungsträgerdichte in Graphen. . . . .	2
2.1. Eine Doppellage Graphen mit AB-Stapelfolge. . . . .	6
2.2. Gitter im Ortsraum und Brillouinzone des reziproken Raums. . .	7
2.3. Bandstruktur in Graphen. . . . .	8
2.4. Gateabhängiger Widerstand einer Graphenprobe. . . . .	10
2.5. Modell des chiralen Tunnelns in Graphen. . . . .	11
2.6. Klein-Tunnel-Wahrscheinlichkeit in Abhängigkeit des Auftreffwinkels.	13
2.7. np-Übergang in Graphen. . . . .	14
2.8. Transmission und Leitfähigkeit einer Graphenheterostruktur. . . .	16
2.9. Energiedispersion und Leitfähigkeit eines Graphenübergitters mit kosinusförmigem Potential. . . . .	17
2.10. Modell eines Graphenübergitters mit rechteckigem Potential. . . .	18
2.11. Dispersionsrelation eines rechteckigen Graphenübergitters. . . . .	19
2.12. Transmission und Leitfähigkeit in Graphen-Übergittern. . . . .	21
2.13. Quantenhalleffekt in einer Graphenmonolage. . . . .	24
2.14. Phasenverschiebung der Leitfähigkeitsoszillationen abhängig vom Magnetfeld. . . . .	25
2.15. Zweipunktleitfähigkeit eines pn-Übergangs. . . . .	26
2.16. Mischung der Randkanäle in einer Graphenheterostruktur. . . . .	27
2.17. Kollaps der Landauniveaus innerhalb eines pp'p-Regimes. . . . .	29
2.18. Halleitfähigkeit eines Graphenübergitters abhängig von der Potentialstärke. . . . .	30
2.19. Elektronentrajektorien im diffusiven Regime. . . . .	32
3.1. Lichtmikroskopaufnahme von exfoliertem Graphen auf 300nm SiO <sub>2</sub> unter 1000-facher Vergrößerung. . . . .	36
3.2. Fabrikation einer Lackmaske mittels Elektronenstrahlolithographie.	37
3.3. Mit Chloroform gereinigtes Graphen bedeckt mit 25nm Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> . . .	43
3.4. Bestimmung der Leitfähigkeit von mit Chloroform behandelten Proben. . . . .	44
3.5. REM-Aufnahmen einer Graphenprobe mit säulenartigem Topgate.	45
3.6. REM-Aufnahmen einer Graphenprobe mit einem Topgate aus mehreren Linien. . . . .	46
3.7. Schematischer Messaufbau mit zwei Lock-In-Verstärkern. . . . .	47

4.1. Ausschnitt des Querschnitts des Simulationsmodells mit einer Topgatespannung von zehn Volt. . . . .	49
4.2. Simulation der induzierten Ladungsträger eines lateral strukturier- ten Topgates in Abhängigkeit der Gitterperiode. . . . .	51
4.3. Simulation der induzierten Ladungsträger eines lateral strukturier- ten Topgates in Abhängigkeit der angelegten Topgatespannung. .	52
4.4. Simulation der induzierten Ladungsträger eines lateral strukturier- ten Topgates in Abhängigkeit der Dicke des Topgatedielektrikums.	53
5.1. Probe A: Back- und Topgatesweeps bei $T=1,4K$ und $B=0T$ . . . .	56
5.2. Probe A: Gateeffektivität aus den Steigungen der Hallgerade. . . .	57
5.3. Probe A: Backgatesweep mit leichter Topgatemodulation bei $B=10T$ .	58
5.4. Probe A: Topgatesweep im Elektronenregime nahe am Diracpunkt bei $B=10T$ . . . . .	60
5.5. Probe B: Back- und Topgatesweeps bei $T=1,7K$ und $B=0T$ . . . .	62
5.6. Probe C: Top- und Backgatesweeps bei $B = 0T$ und $T = 1,7K$ . .	64
5.7. Probe C: Magnetfeldsweeps bei $T = 1,7K$ bei zwei unterschiedli- chen Modulationsarten. . . . .	65
5.8. Probe C: Topgatesweeps bei $B = +10T$ und $T = 1,7K$ . . . . .	66
5.9. Probe C: Die Steigung des Magnetowiderstandes in Abhängigkeit der gewählten Modulation der Ladungsträger. . . . .	67
5.10. Probe C: Auftreten weiterer, nicht zuordenbarer Dips im Magneto- widerstand. . . . .	68
5.11. Probe D: Gateabhängige Widerstandsmessungen bei $B = 0T$ und $T = 1,4K$ . . . . .	71
5.12. Probe E: Vierpunktwidestände abhängig von Back- und Topgate- spannung bei $B=0T$ und $T=1,7K$ . . . . .	73
5.13. Probe E: Leitfähigkeit abhängig von Top- und Backgatespannung bei $B = 14T$ und $T = 1,7K$ . . . . .	75
5.14. Probe E: Phasenverschiebung der Widerstandssoszillationen bei klei- nen Magnetfeldern. . . . .	76
5.15. Probe E: Magnetfeldabhängige Widerstandswerte mit Richtungs- änderung der Hallgeraden. . . . .	77
5.16. Phasenkohärenz- und Intervalleystreulängen in den unipolaren Be- reichen. . . . .	79
5.17. Temperaturabhängige Phasenkohärenzlängen im unipolaren und bi- polaren Regime ermittelt aus Messungen der schwachen Lokalisierung.	80
5.18. Temperaturabhängige Analyse der universellen Leitwertfluktuation- en im unipolaren und bipolaren Regime. . . . .	81
6.1. Abhängigkeit der elektrochemischen Potentiale im Zweikanalbild an einer F/N-Grenzfläche. . . . .	86
6.2. Nicht-lokale Spin-Ventil-Geometrie am Beispiel einer Graphenprobe und das dazugehörige Bild der chemischen Potentiale der Spinkanäle.	89

6.3.	Spinpräzession und Hanlekurven in nicht-lokaler Messanordnung. .	90
6.4.	Modell des intrinsischen Spin-Hall-Effekts in einem Rashbafeld. .	92
6.5.	Spinabhängige Streuung an einem attraktiven Störpotenzial. . . .	93
6.6.	Nachweis des Spin-Hall-Effekts mittels Kerr-Rotationsmikroskopie.	93
6.7.	Messung des Spin-Hall-Effekts an mit Wasserstoff angereichertem Graphen in nicht-lokaler H-Geometrie. . . . .	95
6.8.	Direkte Messung des Spin-Hall-Signals an GaAs. . . . .	97
7.1.	Probendesign zur Untersuchung des Spintransports in Graphen. .	100
7.2.	Bestimmung der Wasserstoffkonzentration an Graphen durch Ramanmessungen. . . . .	101
7.3.	Aufbau und Abmessungen von Probe F und Probe G. . . . .	103
7.4.	Probe F: Zweipunktwiderstand in Abhängigkeit der Backgatespannung. . . . .	104
7.5.	Probe F: Untersuchung der ferromagnetischen Streifen. . . . .	106
7.6.	Probe F: Spin-Ventil-Messung in nicht-lokaler Geometrie. . . . .	107
7.7.	Probe F: Spinpräzessionsmessungen in nicht-lokaler Geometrie. . .	108
7.8.	Probe F: Direkte Messung des Spin-Hall-Effekts in Graphen. . . .	109
7.9.	Probe G: Messung des Schichtwiderstandes und die theoretischen Werte des ohmschen Signals. . . . .	111
7.10.	Probe G: Temperatur- und Stromabhängigkeit des ohmschen Signals.	112
7.11.	Probe G: Untersuchung der Spinpräzession in nicht-lokaler H-Geometrie. . . . .	113



# Danksagung

Zum Schluss möchte ich mich bei all denjenigen bedanken, die zum guten Gelingen dieser Dissertation beigetragen haben. Insbesondere sind dies...

... Prof. Dr. Dieter Weiss, der mir die Arbeit in diesem interessanten Themengebiet des Graphens ermöglichte.

... Dr. Jonathan Eroms, der mich mit seiner freundlichen und hilfsbereiten Art bei allen physikalischen Fragen kompetent unterstützte und betreute.

... Dr. Mariusz Ciorga, Dr. Bastian Birkner und Markus Ehlert, die mir bei Fragen rund um die Auswertung der Spintransportmessungen mit Rat und Tat zur Seite standen.

... Dr. Tobias Korn, der mit mir die Ramanmessungen an hydrogenierten Graphenproben durchgeführt hat.

... alle Mitglieder der Arbeitsgruppe Graphen des Lehrstuhls Prof. Dr. Weiss, mit denen das Arbeiten an diesem Projekt durch die Schaffung einer sehr kollegialen Atmosphäre eine regelrechte Freude war.

... meine Eltern Ludwig und Bettina Schrettenbrunner, die mir das Studium der Physik möglich gemacht haben.

... die Sekretärinnen des Lehrstuhls Prof. Dr. Weiss, Claudia Rahm und Elke Haushalter, die mich bei allen organisatorischen Dingen rund um die Dissertation unterstützten.

... die Lehrstuhltechniker Uli Gürster, Cornelia Linz, Florian Birkner, Michael Weigl und Thomas Haller, die bei technischen Problemen immer sofort hilfsbereit zur Stelle waren.

... meine ehemaligen Diplomanden Dominik Koch und Martin Drienovsky, die gemeinsam mit mir an diesem Projekt gearbeitet haben und deren Expertisen einen Eckpfeiler dieser Dissertation bilden.

... alle diejenigen, denen ich Dank schulde und die sich jetzt wahrscheinlich ärgern, dass sie hier nicht namentlich erwähnt werden.

... mein Sohn Thomas, der mir stets ein Lächeln schenkte, wenn ich morgens das Haus verließ, um an die Universität zu fahren.

... meine Frau Angela, die mich, neben dem Korrekturlesen dieser Arbeit, immer und zu jeder Zeit in allen Lebenslagen hilfsbereit und liebevoll unterstützt.